## (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

#### (43) 国際公開日 2001年1月11日(11.01.2001)

#### PCT

# (10) 国際公開番号 WO 01/02316 A1

(51) 国際特許分類7:

C03C 27/12

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 積水化 学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/04383

(22) 国際出願日:

2000年7月3日(03.07.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

JP

Љ

ЛР

JР

JP

JP

JP

JP

(30) 優先権データ:

特顯平11/187627 1999年7月1日(01.07.1999) 特願平11/201747 1999年7月15日(15.07.1999) 特顯平11/218796 1999年8月2日 (02.08.1999) 特願平11/342172 1999年12月1日(01.12.1999) 特願平11/347675 特顯2000/900

特顯2000/4685 特願2000/26652

1999年12月7日(07.12.1999) 2000年1月6日(06.01.2000) 2000年1月13日(13.01.2000) 2000年2月3日(03.02.2000) (72) 発明者; および

番4号 Osaka (JP).

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 中嶋 稔(NAKA-JIMA, Minoru) [JP/JP]; 〒528-0208 滋賀県甲賀郡土山 町黒川1561-1 Shiga (JP). 三宮伊成 (SANNOMIYA, Isei) [JP/JP]; 〒520-3333 滋賀県甲賀郡甲南町希望ヶ丘2丁 目 26-13 Shiga (JP).

(74) 代理人: 安富康男(YASUTOMI, Yasuo); 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号 中央ビル Osaka (JP).

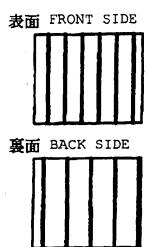
(81) 指定国 (国内): AU, BR, CA, KR, MX, SG, US, ZA.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

/続葉有/

(54) Title: INTERLAYER FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 会わせガラス用中間膜及び会わせガラス



SECTION 断面

(57) Abstract: An interlayer for laminated glasses which does not cause the moire phenomenon even when having an embossed pattern with grooves and ridges disposed regularly or arranged at a regular interval, hence has satisfactory workability in cutting or laminating, and is highly effective in expelling air in preliminary press bonding; and a high-quality laminated glass produced with the same which is almost free from quality defects caused by residual bubbles. The interlayer is highly effective in air expelling even without strictly controlling the air expelling initiation temperature in the preliminary press bonding, is excellent in nonblocking properties during storage, handleability during glass processing, and productivity, and can be easily and efficiently used under various processing conditions. It comprises a thermoplastic resin sheet having on each side thereof an embossed pattern comprising grooves and ridges.

[続葉有]

#### 添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 一請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受のガイダンスノート」を参照。 領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

本発明は、エンボスの配置や間隔が規則的な場合でもモアレ現象の出現がなく、 従って裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であり、かつ、予備圧着工程での脱 気性に優れ、気泡の発生による品質不良が殆ど生じない高品質の合わせガラスを 得ることができる合わせガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスを提 供する。

本発明は、また、予備圧着工程時に脱気開始温度の制御を厳密に行わなくとも 周縁部シール先行現象が発生することがない優れた脱気性を発揮し、構成体の周縁部シールのために加熱温度を上げる必要がない合わせガラス用中間膜及びそれ を用いてなる合わせガラスを提供する。

本発明は、更に、保管中のブロッキング性やガラス加工時の取扱い作業性及び 生産性に優れると共に、予備圧着工程における脱気性とシール性に優れ、しかも、 多様なユーザーの多様な加工条件に簡便かつ効率的に対応することができる合わ せガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスを提供する。

本発明は、熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜である。

明細書

1

合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

## 5 技術分野

本発明は、脱気性に優れた合わせガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスに関する。

#### 背景技術

15

20

25

10 ガラス板の間に、可塑化ポリビニルブチラール等の熱可塑性樹脂シートからなる中間膜を挟み、互いに接着させて一体化してなる合わせガラスは、自動車、航空機、建築物等の窓ガラスに広く使用されている。

このような合わせガラスは、外部から衝撃が加えられると、ガラス部分は破損しても、ガラスの間に介在された中間膜は容易には破損せず、また、ガラスの破損後においてもガラスは中間膜に貼着した状態であるので、その破片が飛散することが少ない。従って、車両や建築物の中の人体がガラスの破片により傷害をうけることを防止することができる。

このような合わせガラスは、通常、ガラス板の間に中間膜を挟み、これをニップロールに通して扱くか又はゴムバックに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら予備圧着し、次いで、オートクレーブ内で加熱加圧して、本圧着を行うことにより製造される。

上記中間膜には、透明性、接着性、耐貫通性、耐候性等の基本性能が良好であることのほかに、保管中に中間膜同士がプロッキングしないこと、ガラス板の間に中間膜を挟む際の取扱い作業性が良好であること、更に空気の巻き込みによる気泡の発生をなくすために、予備圧着工程での脱気性が良好であること等が要求される。

上記のような要求を満たすために、通常、中間膜の両面には微細な凹部と凸部 とからなる多数のエンボスが形成されている。凹部と凸部の形態としては、例え ば、多数の凸部とこれらの凸部に対する多数の凹部とからなる各種の凹凸模様や、

多数の凸条とこれらの凸条に対する多数の凹溝とからなる各種の凹凸模様を有するエンボス形状が開示されている。

また、エンボスの形状の、粗さ、配置、大きさ等の種々の形状因子も検討されており、例えば、特公平1-32776号公報には、「軟質の熱可塑性樹脂よりなり、積層接着用中間膜として用いられる微細な凹凸(エンボス)の表面形状を有するフィルム又はシートの少なくとも片面が、このフィルム又はシートと一体成形された多数の独立した突出部を有し、かつ該突出部に対する凹部の全てを同一水準で連続せしめられた表面形状とされてなることを特徴とする熱可塑性樹脂製中間膜」が開示されている。

10 しかし、中間膜の両面に規則的なエンボスが形成されると、互いの回折面の干渉により、一般的にモアレ現象と呼称される縞状の回折像が出現する。

また、従来の凹凸模様は、通常ロールをサンドブラスト加工することによりランダムに設けられるので、充分な脱気が行ない難いものであった。

上記モアレ現象は、外観の面から好ましくないばかりか、中間膜の裁断時や合わせ加工の作業時に、キラキラと目につく干渉縞の変化等により、作業者の目を疲れさせたり、乗物酔いのような症状を生じさせ、その結果、作業性の低下をもたらすという問題点がある。また、規則的に配置されたエンボスが片面のみに付与された中間膜の場合であっても、それを複数枚重ね合わせて作業する際には、やはりモアレ現象が出現し、同様に作業性の低下を来すという問題点がある。

上記モアレ現象は、中間膜表面に形成されたエンボスの配置や間隔が規則的であればあるほど出現し易く、例えば、各エンボスの凸部の少なくとも2点間の距離が一定となるような配置にある場合や、中間膜の両面のエンボスの配置が同一である場合等には、殆どの場合、モアレ現象が出現する。

従って、例えば、格子模様、線条模様、一定の間隔をもつ広がりを有する放射 25 状模様等に形成されたエンボスは、モアレ現象が出現し易い代表的なエンボスの 例と言える。

上記モアレ現象の出現とそれに伴う作業性の低下という問題点に対応するため、 例えば、特開平5-294679号公報には、「中間膜表面に配置が規定された 多数の突起部を設け、その突起部より微細な凸部を有するエンボスを不規則に付

20

25

与する方法」が開示されている。

しかし、上記の方法では、上記モアレ現象の出現はかなり改善されるものの、 突起部より微細な凸部を有するエンポスを突起部表面及び突起部が位置しない表面にも付与しているので、微細な凸部を有するエンポスの凹部に空気溜まりが発生し、予備圧着工程での脱気性が不充分になるという問題点があった。

また、特表平9-508078号公報等には、凹凸形状において溝形状を規則的に配置し、そのパターンを各面で $25^\circ$ 以上に、より好ましくは $90^\circ$ にすることによってモアレを解消する中間膜が開示されている。

上述の方法において、モアレを解消するために90°の刻線を付与した形状は、 刻線45°のロールを用いて熱転写されることが公知である。しかし、ロールの 刻線の角度が大きくなるほど転写が容易でなくなる。一般には、転写流れに対し て平行な縦刻線形状が最も容易に形成することができ、横刻線形状は転写の際に 温度制御と高い圧力とを必要とする。

また、上述の方法では、予備圧着工程における脱気開始時の温度を厳密に制御しないと、合わせガラス構成体(例えば、ガラス/中間膜/ガラス)の周縁部が 先にシールされる周縁部シール先行現象が発生し、構成体内部の脱気が更に不充 分になるという問題点があった。

上記周縁部シール先行現象の発生を防止する手段として、溝形状の凹凸形状の大きさにより、脱気を開始するときの温度を管理し、脱気開始時の構成体圧着時にシール先行現象を防止したり、また、エンボスの粗さを大きくする方法もあるが、この場合、構成体の周縁部のシールを確実に行うためには予備圧着工程における予備圧着温度を大幅に高める必要が生じるという問題点があった。

また、中間膜両面の刻線形状を成形性の観点から平行にすると、膜取扱い性、特に自着力においてその自着性が高くなるという問題点があった。

また、上記従来の中間膜は、保管中のブロッキング性、取扱い作業性及び予備 圧着工程での脱気性は相当に改善されるが、例えば、面積が広い合わせガラスや 曲率が大きい合わせガラスを製造する場合、又は、合わせガラスの生産性を上げ る場合のように、厳しい条件のもとで脱気する場合には、脱気性及びシール性の 点で充分に満足のいくものではないという問題点があった。 WO 01/02316 PCT/JP00/04383

即ち、上記のような厳しい条件のもとで脱気する場合には、特にガラス板と中 間膜とのシール状態を全体にわたって均一にすることが難しく、脱気性及びシー ル性が不完全となり、オートクレープ内で加熱加圧して本圧着する際に、シール 不良部から加圧空気が侵入して、ガラス板と中間膜との間に気泡が発生しやすく なり、透明性に優れる合わせガラスを得ることができない。

このようなシール不良は、予備圧着条件を非常に狭い範囲で厳密に調節するこ とにより、ある程度は改善されるが、適性温度範囲が非常に狭いので、気泡発生 による品質不良が多発する。

また、上記開示にあるような、凹凸の形状や凹部の水準を全体にわたって均一 にした中間膜を用いて合わせガラスを製造した場合、中間膜そのものが有する厚 み差や、合わせガラス用として用いるガラスの厚み差や曲率差によるペアー差を 充分に吸収することができないという問題点がある。

また、従来の中間膜の場合、多様なユーザーの多様な加工条件に対応するため には、例えば、それぞれに適応し得る凹凸形状を有するエンボスロール等を数多 く準備して、それぞれのユーザーの加工条件に合致する種々の凹凸形状からなる エンボスを付与した多品種の中間膜を製造する必要があり、生産性の点で効率的 でないという問題点もある。

15

20

25

更に、扱き脱気法により予備圧着を行う場合と、減圧脱気法により予備圧着を 行う場合とでは、前者は加圧下で脱気され、後者は減圧下で脱気される等、予備 圧着条件に大きな差があり、一方の設備しか擁していないところでは、予備圧着 できない場合があった。

上述のとおり、脱気工程である予備圧着工程としては、一般に、ゴムロールを - 用いて合わせガラスを扱く扱き脱気方式とゴムバッグに入れて減圧することによ り合わせガラス周辺から空気を抜き出す減圧脱気方式とがある。

減圧脱気方式における脱気工程としては、例えば、まず、充分に冷却(例えば 20℃) されたゴムバッグ内に、ガラス/中間膜/ガラスの構成の合わせガラス を入れ減圧を開始する。減圧保持時間を10分程度とし、ガラス/中間膜間の全 体の空気を充分に除いた後に昇温し約110℃まで加熱する。この時、ガラス/ 中間膜間はほぼ密着し、その後、常温近くまで冷却してから合わせガラスを取り

25

出し、次の本圧着工程へ移行する。

予備圧着工程において、減圧脱気方式を用いる場合、この工程は加熱ー冷却サイクルからなるので、生産性を向上させるためには、ゴムバッグ内の初期温度を高くして、到達温度を低くすることが要求されている。

しかし、このゴムバッグ内の初期温度を高くしていくと、減圧時にガラス周辺部が先に潰れてしまい、中央部分の空気が抜けにくくなって残る。予備圧着工程で充分脱気できれば、残存する若干量の空気は、本圧着工程(例えば、130℃×1.3MPa×1時間)で中間膜中に溶解させることができるので透明な合わせガラスを得ることができるが、残存空気が多いと、本圧着工程でも空気を溶解できなくなり、発泡状態となってしまう。また、到達温度を低くしていくと、ガラス周辺部のシールが完全でない部分が残り、その部分に、本圧着工程時の高圧空気が浸入して発泡状態となってしまう。

更に、ガラス/中間膜/ガラスの構成の合わせガラスでは、ガラスの曲げ精度 や自重のかかり方等により、ガラス同士が合わさろうとする部分と離れようとす る部分ができることも、上述の現象の要因となっている。

従来のエンボスの凹凸の形状としては、例えば、ランダムな形状(山と谷が交互に存在する)や、四角錐、三角錐を配置した規則的な形状等が用いられており、それ以外の形状としては、例えば、特表平9-508078号公報で、減圧脱気方式には、溝を用いて空気の抜け道を造る方法が、減圧時のシール先行を防止するのに有効であることが開示されている。

しかし、この方法では、ゴムバッグ内の初期温度を高くすることができるものの、到達温度も同様に高くする必要があり、到達温度を低くすると本圧着時に空気の浸入を起こして発泡するという問題があった。即ち、従来のランダム形状のエンボスでは、初期温度20℃で到達温度85℃まで加熱すればよいものが、上記の方法では初期温度35℃で到達温度は95℃まで加熱しなければ発泡してしまい、溝又は山脈の深さ(高さ)、幅、ピッチの最適化を図っても、ある体積までエンボスを潰すことが必要なので、初期温度と到達温度とはほぼ平行に上方へ移動することとなり、脱気工程である予備圧着工程の生産性を向上させる効果が小さかった。

#### 発明の要約

20

本発明は、上記に鑑み、エンボスの配置や間隔が規則的な場合でもモアレ現象の出現がなく、従って裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であり、かつ、予備 圧着工程での脱気性に優れ、気泡の発生による品質不良が殆ど生じない高品質の 合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスを提供することを目的とする。

本発明は、また、予備圧着工程時に脱気開始温度の制御を厳密に行わなくとも 周縁部シール先行現象が発生することがない優れた脱気性を発揮し、構成体の周 10 縁部シールのために加熱温度を上げる必要がない合わせガラス用中間膜及びそれ を用いてなる合わせガラスを提供することも目的とする。

本発明は、更に、保管中のプロッキング性やガラス加工時の取扱い作業性及び 生産性に優れると共に、予備圧着工程における脱気性とシール性に優れ、しかも、 多様なユーザーの多様な加工条件に簡便かつ効率的に対応することができる合わ せガラス用中間膜及びそれを用いてなる合わせガラスを提供することを目的とす る。

本発明は、熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜(以下、中間膜ともいう)である。

本発明の第1の態様は、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボス の配置間隔とが異なるように形成されている合わせガラス用中間膜である。

本発明の第1の態様においては、少なくとも片面の凹部が連続するように形成されていることが好ましく、更に、少なくとも片面の凹部の底辺が連続するように形成されていることがより好ましい。

本発明の第1の態様においては、また、一方の面のエンボスの配置間隔(L 2)と、他方の面のエンボスの配置間隔(L 2)とは、(L 1)<(L 2)の関係にあり、一方の面の凸部の配置位置の前後(L 1×0.25)の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合は、一方の面の凸部の数の50%以下であることが好ましい。

本発明の第1の態様においては、更に、少なくとも片面の凹部は、刻線状の模

様を形成していることが好ましい。

本発明の第2の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、かつ、同一面の前記凸部は、頭頂が平面形状を有している合わせガラス用中間膜である。

本発明の第2の態様においては、更に、凸部の頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されていることが好ましい。

本発明の第2の態様においては、頭頂の表面の粗さRaが2. 5  $\mu$ m以上であることが好ましく、3. 0  $\mu$ m以上であることがより好ましい。

本発明の第2の態様においては、平面形状は、幅が凸部の配置間隔の20%以 10 上であることが好ましい。

本発明の第2の態様においては、平面形状は、幅が一定であっても良く、幅が ランダムであっても良い。

本発明の第3の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、前記溝形状の内に分断壁が形成されている合わせガラス用中間膜である。

15 本発明の第3の態様においては、分断壁は、高さが溝の深さより小さいことが 好ましい。

本発明の第3の態様においては、分断壁は、等間隔で配置されていることが好ましい。

本発明の第4の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、 20 同一水準になく、少なくとも片面は、表面粗さ(Rz)と陰原型の表面粗さ(Rz)との比がRzv/Rz $\geq 0$ . 25である合わせガラス用中間膜である。

本発明の第4の態様においては、溝形状は、線状に形成されていても良く、格子状に形成されていても良い。

本発明の第5の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、連続した溝形状を有しており、同一面の前記凸部は、溝形状の分断部を有しており、かつ、前記分断部は、溝形状の底辺が前記凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にない合わせガラス用中間膜である。

本発明の第5の態様においては、凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とが格子状を形成していても良く、ランダムな形状を形成していても良い。

本発明の第5の態様においては、凸部の分断部の溝形状の深さが一定であって も良く、ランダムであっても良い。

本発明の第6の態様は、少なくとも片面に凹溝が形成されており、前記凹溝と前記熱可塑性樹脂シートの押出方向との角度が25°未満であるガラス用中間膜 である。

本発明の第7の態様は、少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、 前記溝形状は、断面積が一定であり、かつ、最大溝深さに対し5%以上の深さを もつ溝が形成された深さ分布を有する合わせガラス用中間膜である。

本発明の第7の態様においては、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝は、

10 10mm以下の配置間隔で形成されていることが好ましい。

本発明の第7の態様においては、溝形状は、合わせガラス用中間膜の流れ方向 に平行に形成されていることが好ましい。

本発明においては、熱可塑性樹脂シートは、可塑化ポリビニルアセタール樹脂シートからなることが好ましい。

15 少なくとも一対のガラス間に、本発明の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなる合わせガラスもまた本発明の1つである。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、実施例1~3の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図 20 である。

第2図は、比較例1の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図である。

第3図は、実施例4の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図である。

25 第4図は、実施例5の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図である。

第5図は、実施例6の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図である。

第6図は、比較例2の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す模式図であ

る。

第7図は、実施例8及び実施例9で得られた合わせガラス用中間膜のエンポス 模様(凹凸模様)を示す模式図である。

第8図は、実施例10及び実施例11で得られた合わせガラス用中間膜のエン ボス模様 (凹凸模様) を示す模式図である。

第9図は、比較例3で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を示す模式図である。

第10図は、実施例12及び13で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様(凹凸の模様)を示す模式図である。

10 第11図は、実施例14及び15で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス の模様(凹凸の模様)を示す模式図である。

第12図は、実施例16で得られた合わせガラス用中間膜のエンポスの模様 (凹凸の模様)を示す模式図である。

第13図は、比較例4で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様(凹 15 凸の模様)を示す模式図である。

第7図~第13図において、aは、凸部の配置間隔(ピッチ)を示し、bは、 凸部頭頂の平面形状の幅を示し、cは、凹部の幅を示す。

第14図は、実施例17及び実施例18で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を示す模式図である。

20 第15図は、実施例19及び実施例20で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を示す模式図である。

第16図は、比較例5で得られた合わせガラス用中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を示す模式図である。

第17図は、R z v の測定に用いる楔状の触針(先端幅1000μm、対面角 25 90°)を示す斜視図である。

第18図は、本発明の第5の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す斜視図である。

第19図は、本発明の第5の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す平面図である。

第18図及び第19図においては、1は、凹部の溝形状を示し、2は、凸部の 分断部を示し、3は、凸部の分断部の溝の深さを示す。

第20図は、本発明の第6の態様の合わせガラス用中間膜の一例を示し、(a)はその平面図、(b)は側面図である。

5 第20図において、4は、凹溝を示し、5は、エンポスを示す。

## 発明の詳細な開示

20

以下に本発明を詳述する。

本発明の中間膜は、熱可塑性樹脂シートからなる。

10 本発明において用いられる熱可塑性樹脂シートとしては、合わせガラス用中間膜に用いられる公知のシートを用いることができ、例えば、可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シート、ポリウレタン系樹脂シート、エチレンー酢酸ビニル系樹脂シート、エチレンーエチルアクリレート系樹脂シート、可塑化塩化ビニル系樹脂シート等が挙げられる。これらの熱可塑性樹脂シートは、接着性、耐候性、耐貫通性、透明性等の合わせガラス用中間膜に必要とされる基本性能に優れるが、なかでも、可塑化ポリビニルブチラール樹脂シートに代表される可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シートが好適に用いられる。

上記可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シートとしては、ポリビニルアセタール樹脂が主成分として用いられるものが好ましく、このポリビニルアセタール樹脂としては、例えば、ブチラール化度60~70モル%、重合度1000~2000ポリビニルブチラール樹脂が好適に使用される。

上記可塑化ポリビニルアセタール系樹脂シートに用いられる可塑剤としては、 例えば、エチレングリコールジー2-エチルブチレート、1,3-プロピレング リコールジー2-エチルブチレート、1,4-プロピレングリコールジー2-エ チルブチレート、1,4-ブチレングリコールジー2-エチルブチレート、1, 2-ブチレングリコールジー2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジー 2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジー2-エチルへキソエート、ジ プロピレングリコールジー2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジー 2-エチルペントエート、トリエチレングリコールジー2-エチルへキソエート、

テトラエチレングリコールジー2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ カプリエート、トリエチレングリコールジカプリエート等が挙げられる。

本発明においては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、これら可塑剤の添加量は20~60重量部の範囲内であるのが好ましい。

5 また、本発明の中間膜は、必要に応じて、熱安定剤、紫外線吸収剤、接着力調整剤等の各種添加剤を含有してもよい。

上記熱可塑性樹脂シートの膜厚は、合わせガラスに必要とされる耐貫通性等を 考慮して適宜決定されれば良く、特に限定されるものではないが、従来の中間膜 と同様に、0.2~2mmであることが好ましい。

10 本発明の中間膜においては、上記熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成されている。

上記エンボスの模様としては本発明の各態様の条件に反しない限り特に限定されず、多数の凸部とこれらの凸部に対する凹部とからなる各種の凹凸模様が挙げられる。これらの凹凸模様は規則的に分布していてもよく、不規則に分布していてもよいが、規則的に分布していることが好ましい。

上記凸部の高さは、全て同じであっても異なっていてもよく、上記凸部に対する凹部の深さも、全て同じであっても異なっていてもよい。

上記凸部の形状としては本発明の各態様の条件に反しない限り特に限定されず、 三角錐、四角錐、円錐等の錐体;截頭三角錐、截頭四角錐、截頭円錐等の截頭錐 体;頭部が山型や半球状である擬錐体等が挙げられる。上記凹部の形状としては、 上記凸部に対応したものが挙げられる。

上記エンボスを形成する方法としては、エンボスロール法、カレンダーロール法、異形押出法、メルトフラクチャーを利用した押出リップエンボス法等が挙げられる。なかでも、定量的に一定の微細な凹部と凸部とからなるエンボスが得られる点で、エンボスロール法が好ましい。

上記エンボスロール法で用いられるエンボスロールとしては、例えば、金属ロール表面に酸化アルミニウムや酸化珪素等の研削材を用いてブラスト処理を行い、次いで表面の過大ピークを減少させるためにバーチカル研削等を用いてラッピングを行うことにより、ロール表面に微細なエンボス模様(凹凸模様)を形成した

10

15

20

もの、彫刻ミル(マザーミル)を用い、この彫刻ミルのエンボス模様(凹凸模様)を金属ロール表面に転写することにより、ロール表面に微細なエンボス模様 (凹凸模様)を形成したもの、エッチング(蝕刻)によりロール表面に微細なエンボス模様 (凹凸模様)を形成したもの等が挙げられる。

上記エンボスの形状において、ガラス板と中間膜との予備圧着工程での脱気の際の空気の抜けやすさは、凹凸形状の凹部の連続性に関係があり、凹部の間隔や配置は空気の抜けやすさに大きく影響しない。脱気の初期には凹凸形状の凹部の空気はガラスとの界面から選択的に凹部の溝に流入する。その後溝内の空気は溝を通って脱気されるが、この時溝内に残る空気量は中間膜が充分に吸収しうる量である。

上記凸部と上記凹部の寸法は本発明の各態様の条件に反しない限り特に限定されず、凸部の配置間隔(ピッチ)は $10\mu$ m~1cmであることがより好ましく、更に好ましくは $50\sim100\mu$ mであり、特に好ましくは $200\sim800\mu$ mである。 $200\sim800\mu$ mであると透明性が更に向上する。また、凸部の高さは $5\sim500\mu$ mであることが好ましく、より好ましくは $20\sim100\mu$ mである。更に、凸部の底辺の長さは $30\sim1000\mu$ mであることが好ましい。なお、本明細書において、配置間隔とは、凹部又は凸部の中心から隣接する凹部又は凸部の中心までの距離を意味する。

予備圧着時のエンボスの潰れ性にはエンボスの体積が大きく影響する。エンボスの体積を決定するのは、凸部の間隔や配置、凸部の突平面の広がりである。凸部の突平面が広いほどエンボスの体積を大きく設定できる。このためエンボスの粗さとしては小さく設定できることになる。エンボスの体積が大きく設定できるとシール先行の問題が生じない合わせガラス用中間膜を得ることができる。予備圧着時の周辺シールに必要な温度では、合わせガラス用中間膜は充分流動状態となり、エンボスの粗さがある一定の範囲にあれば充分周辺をシールすることが可能となる。

本発明の第1の態様は、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なるように形成されている合わせガラス用中間膜である。

本発明の第1の態様によれば、中間膜の一方の面のエンボスの配置間隔と他方

25

の面のエンボスの配置間隔とを異なるように形成することにより、エンボスの配置や間隔が比較的に規則的な場合であっても、上記モアレ現象の出現を効果的に 抑制することができる。

一般的に、モアレ現象の出現は、中間膜の両面のエンボスの配置や間隔が同等に近いほど起こり易い。従って、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とを異なるように形成すること、即ち、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とに意識的に差を設けることにより、各面のエンボスの配置や間隔が比較的に規則的であってもモアレ現象の出現を効果的に抑制することが可能となる。

10 本発明の第1の態様においては、少なくとも片面の凹部が連続するように形成されていることが好ましい。

中間膜の少なくとも片面のエンボスの凹部を連続したものとすることにより、エンボスの凹部は連通し、予備圧着工程での脱気性を著しく向上させることができるので、得られる合わせガラスは、気泡の発生による品質不良が殆ど生じない高品質のものとなる。更に、中間膜の少なくとも片面の凹部の底辺が連続するように形成されていることがより好ましい。

本発明の第1の態様においては、中間膜の一方の面のエンボスの配置間隔が他方の面のエンボスの配置間隔に対し1.25倍以上となるように形成されていることが好ましい。他方の面のエンボスの配置間隔に対する一方の面のエンボスの配置間隔が1.25未満であると、モアレ現象の出現を抑制する効果が不充分となることがある。より好ましくは1.3倍以上である。

本発明の第1の態様においては、また、一方の面のエンボスの配置間隔(L1)と、他方の面のエンボスの配置間隔(L2)とが、(L1)<(L2)の関係にあり、一方の面の凸部の配置位置の前後(L1×0.25)の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合は、一方の面の凸部の数の50%以下であることが好ましい。凸部が上記の配置条件を満たす場合、同様に、凹部も上記の配置条件を満たすことになる。即ち、一方の面の凹部の配置位置の前後(L1×0.25)の範囲内に、他方の面の凹部が存在する割合は、一方の面の凹部の数の50%以下であることが好ましい。なお、本明細書において、凸部又は凹部の配置

20

位置とは、凸部又は凹部の中心の位置を意味し、凸部又は凹部が存在するとは、 凸部又は凹部の中心が存在することを意味する。一方の面のエンボスと他方の面 のエンボスとがこの条件を満たすように配置されている場合は、モアレ現象の出 現を効果的に抑制することができる。より好ましくは30%以下であり、更に好 ましくは10%以下であり、0%であること、即ち、一方の面の凸部又は凹部の 配置位置の前後(10%0、10%0 の範囲内に、他方の面の凸部又は凹部が全く 存在しないことが特に好ましい。

本発明の第1の態様においては、更に、少なくとも片面の凹部が、刻線状の模様を形成していることが好ましい。

10 エンボス凹部の模様としては、刻線状以外に格子状、放射状、半球状等も挙げられるが、中間膜の少なくとも片面の凹部の模様を刻線状とすることにより、予備圧着工程での脱気性が更に向上する。

本発明の第1の態様は、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なるように形成されている、即ち、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とに意識的に差が設けられているので、エンボスの配置や間隔が規則的な場合でも、モアレ現象の出現がなく、従って裁断時や合わせ加工時の作業性が良好なものとなる。

また、少なくとも片面の凹部が連続するようなエンボスを形成することにより、エンボス凹部は連通するので、合わせガラス加工時の予備圧着工程における脱気性に優れたものとなる。従って、得られる合わせガラスは、気泡の発生による品質不良を殆ど生じない高品質のものとなる。

更に、一方の面のエンボスの配置間隔が他方の面のエンボスの配置間隔に対し 1.25倍以上となるように、又は、一方の面の凸部の配置位置の前後(L1× 0.25)の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合が、一方の面の凸部の数 の50%以下であるようにエンボスを形成することにより、モアレ現象の抑制効 果は一段と向上する。

また、少なくとも片面の凹部の模様が刻線状となるようなエンボスを形成する ことにより、脱気性向上効果は一段と向上する。

本発明の第2の態様は、少なくとも片面の凹部は、底辺が連続した溝形状を有

しており、同一面の凸部は、頭頂が平面形状を有している合わせガラス用中間膜である。

本発明の第2の態様では、少なくとも片面の凹部を底辺が連続した溝形状とすることにより、著しい脱気性向上効果を得ることができる。

5 また、本発明の第2の態様においては、凸部の頭頂を平面形状体とする。上記 凸部の頭頂の面積が広いほどエンボス凸部の体積が大きくなるので、エンボスの 平均表面粗さを相対的に小さくすることができ、予備圧着工程における合わせガラス構成体の上記周縁部シール先行現象の発生を効果的に抑制することが可能と なる。また、中間膜は予備圧着工程における合わせガラス構成体の周縁部シール に必要な通常の温度で充分に流動状態となり得るので、通常の温度で充分に周縁 部シールを行うには、エンボスの平均表面粗さが100μm以下であるのが好ましく、70μm以下であるのがより好ましい。

本発明の第2の態様では、少なくとも片面の凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、同一面の凸部は、頭頂が平面形状を有しているので、凸部の延長方向に対し直交する断面が台形状を有しており、凸部の頭頂の面積が大きくなり、それに伴って凸部の体積も大きくなり、予備圧着工程における合わせガラス構成体の周縁部シール先行現象の発生を効果的に抑制することができる。従って、予備圧着工程において合わせガラス構成体の中央部近傍に存在する空気も効果的に脱気され得る。

20 上記凸部は、更に、頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されてなることが好ましい。凸部の頭頂を平面にすることにより、中間膜の自着性が高くなることがあるが、該平面部により微細な凹部及び凸部を形成することにより、得られる中間膜の自着性を抑えることができ、膜取扱い性が良好となる。

上記頭頂の表面の粗さは、Raが2.5 $\mu$ m以上であることが好ましい。Raが2.5 $\mu$ m以上であれば、中間膜同士を合わせて定法にて保管しても、中間膜同士の接触面積を小さくすることができるので、自着性が問題のないレベルとなる。より好ましくは、Raが3.0 $\mu$ m以上である。

図7は後述する本発明の実施例8及び実施例9で得られた中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を示す模式図であるが、図7において、aはエンボス凸部の配置

間隔(ピッチ)を表し、bはエンボス凸部頭頂の平面形状の幅を表す。

本発明の第2の態様においては、上記平面形状の幅(b)が凸部の配置間隔(a)の20%以上、即ち、b/aが20%以上であることが好ましい。b/aが20%未満であると、凸部の体積向上効果及びそれに伴う周縁部シール先行現象の発生防止効果を充分に得られないことがある。一方、b/aが100%になると実質的にエンボス凹部がなくなることがあるので、b/aは100%未満であることが好ましく、より好ましくは90%以下である。

また、本発明の第2の態様においては、上記平面形状の幅が全て一定であって も良いし、部分的に異なる幅、即ち、ランダムな幅であっても良い。

10 本発明の第2の態様においては、その一方の面の凹凸形状の間隔に対して他方の面の凹凸形状の間隔が同一でないことが好ましい。同一であると、モアレ現象が生じ易い。

本発明の第2の態様における、上記のエンボスの模様(凹凸の模様)としては 特に限定されず、例えば、刻線状、格子状、放射状、半球状等が挙げられる。

15 本発明の第2の態様は、少なくとも片面の上記凹部の底辺が連続した溝形状を 有しているので、上記凹部の底辺は連続しており、予備圧着工程において優れた 脱気性を発揮する。

また、同一面の上記凸部の頭頂が平面形状を有しているので、上記凸部の頭頂の面積及び上記凸部の体積は大きくなり、予備圧着工程における合わせガラス構成体の周縁部シール先行現象の発生は効果的に抑制される。従って、合わせガラス構成体の中央部近傍に存在する空気も効果的に脱気される。特に、上記凸部の配置間隔(ピッチ)に対する上記凸部頭頂の平面形状の幅の比率を20%以上とすることにより、上記特性は一段と向上する。

本発明の第3の態様は、少なくとも片面の上記凹部は、溝形状を有しており、 25 上記溝形状の内に分断壁が形成されている合わせガラス用中間膜である。

本発明の第3の態様においては、上記溝形状の内に分断壁が形成されている。 溝内に分断壁を有することにより、溝底部まで充分にシールできない場合でも、 必ず分断壁が溝の底部より上部に位置し、分断壁により中間膜とガラス板との間 がシールされることになりシール条件を緩和することができる。

上記分断壁の高さは、溝の深さより小さいことが好ましい。上記分断壁の高さが、溝形状の深さより大きいと脱気及びシールが不充分となる場合がある。

上記分断壁は、等間隔で配置されていることが好ましい。上記分断壁が、等間 隔で配置されていないと脱気が効率よく進行しないことがある。

本発明の第3の態様においては、その一方の面の凹凸形状の間隔に対して他方の面の凹凸形状の間隔が同一でないことが好ましい。同一であるとモアレ現象が 生じやすい。

本発明の第4の形態は、少なくとも片面の上記凹部は、溝形状を有しており、同一水準になく、少なくとも片面は、表面粗さ(Rz)と陰原型の表面粗さ(Rzv)との比がRzv/Rz $\ge$ 0.25である合わせガラス用中間膜である。

なお、本明細書において、「同一水準になく」とは、溝の深さが均一ではない ことを意味する。

上記R z は、よく知られた通常の10点平均粗さを意味するもので、一般に、20 ディジタル形の触針電気式表面粗さ測定器によって測定される。

また、上記Rzv も、一般に、ディジタル形の触針電気式表面粗さ測定器によって測定される。

上記Rzvは、換言すれば、シート表面のエンボスの凸部を凹部とし、かつ、凹部を凸部とした場合について、楔状の触針(先端幅 $1000\mu$ m)を用いて測定される10点平均粗さということができる。ここで、楔状の触針の先端幅を $1000\mu$ mとしたのは、エンボスの凸部及び凹部の間隔(通常は $200\sim1000\mu$ m)を考慮したもので、このような先端幅 $1000\mu$ mの触針を用いることにより、エンボスの凹部のうち、特に深い凹部の形状変化が測定される。

上記Rzv は、エンボスの凹部の水準を表すパラメーターとなるもので、脱気

20

の際の空気の抜けやすさ及びシール性と密接な関係がある。また、上記R z は、 エンボスの凸部の状態を表すパラメーターとなるもので、空気の移動に対する抵 抗となるとともに、合わせ加工時のエンボスの潰れやすさと密接な関係がある。

上記R z v とR z との関係を種々検討した結果、R z v /R z ≥ 0. 25の関係を満たしていると、予備圧着工程での脱気性及びシール性に優れ、オートクレープ内で加熱加圧して本圧着する際に、シール不良部から加圧空気が侵入して、ガラス板と中間膜との間に気泡が発生し難い中間膜が得られることを見出した。

なお、中間膜同士のブロッキングは保管中に重ねられる中間膜の枚数にもよるが、通常、10点平均粗さ(Rz)が $20\sim100\mu$ mの中間膜が使用され、しかもこのような中間膜は $500\sim100$ 0枚程度の自重を考慮すればよく、そのような状態での荷重では、中間膜が上述の特定の条件を満たしておれば、耐ブロッキング性が良好であるとともに、保管中や合わせ加工の際の取扱い作業が容易であることも判った。

本発明の第4の態様においては、その両面が特定の表面粗さになっているもの 15 が好ましいが、一方の面のみが特定の表面粗さになっていて、他方の面は従来の 微細な凹凸からなるエンボスが形成されたものであってもよい。

本発明の第4の態様において、溝形状は線状に形成されていてもよく、格子状 に形成されていてもよい。

本発明の第5の態様は、少なくとも片面の凹部は連続した溝形状を有しており、 同一面の凸部は溝形状の分断部を有しており、かつ、該分断部の溝形状の底辺が 凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にない合わせガラス用中間膜である。

上記凸部の溝形状の分断部は、主として凹凸の大きさを制御する機能を果たすものであり、上記分断部を多くすると凹凸の体積が小さくなるので、特に合わせガラスの周辺部のシールがし易くなり、逆に上記分断部を少なくすると凹凸の体積が大きくなるので、合わせガラスの周辺部が先にシールされ合わせガラスの中央部に空気が残存してしまうことを効果的に防止することができる。

上記凸部の分断部の溝形状は任意に制御することができるので、凹部の連続した溝形状による優れた脱気性と凸部の分断部の溝形状による優れたシール性とを 兼備する中間膜を、多様なユーザーの多様な加工条件に対応して簡便かつ効率的

20

に得ることが可能となる。

図18は本発明の第5の態様の合わせガラス用中間膜のエンボス模様を示す斜 視図であり、図19はその平面図である。

本発明の第5の態様においては、凹部の溝形状1と凸部の分断部2の溝形状と は、格子状を形成していても良いし、ランダムな形状を形成していても良いが、 格子状であることがより好ましい。

また、本発明の第5の態様においては、凸部の分断部の溝の深さ3は、一定の深さであっても良いし、ランダムな深さであっても良いが、一定の深さであることがより好ましい。

10 本発明の第5の態様においては、特定の条件を満たすエンボスが中間膜の両面に形成されていることが好ましいが、中間膜の一方の面のみに特定の条件を満たすエンボスが形成されており、他方の面には従来の通常のエンボスが形成されているものであっても良い。

本発明の第5の態様においては、少なくとも片面の凹部が連続した溝形状を有しているので、合わせガラス加工時の予備圧着工程において、熱や加圧によりエンボスの凹凸が潰れても、凹部の連続した溝形状は最終段階まで残る。従って、充分な脱気を行うことができる。

また、本発明の第5の態様においては、凹部に対する凸部が分断部を有しており、しかも、この分断部の溝形状の底辺が凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にないので、凸部の分断部の溝形状を制御することにより、合わせガラス加工時のシール性を優れたものとすることができる。更に、凸部の分断部の溝形状を制御することにより、多様なユーザーの多様な加工条件に簡便かつ効率的に対応することができる。

本発明の第6の態様は、少なくとも片面に凹溝が形成されており、該凹溝と熱可塑性樹脂シートの押出方向との角度が25°未満である合わせガラス用中間膜である。

本発明の第6の態様において用いられる熱可塑性樹脂シートに形成された凹溝と、熱可塑性樹脂シートの押出方向とのなす角度が大きすぎると、特に扱き脱気法により予備圧着を行い合わせガラスを製造する際に、合わせガラスに発泡(気

20

25

泡)が発生しやすくなり、また、凹溝が、シートの縁部にかかると、オートクレープ内で加熱加圧して本圧着を行う際に、シール不良を発生し、空気を巻き込む ことがあるので、25°未満に限定され、好ましくは15°未満である。

上記凹溝は、連続した溝であり、複数の凹溝がある場合、互いの深さ、幅、ピッチは一定であるのが好ましいが、溝底部に適度なうねりがあってもよいし、互いの深さ、幅、ピッチが異なって不規則に設けられていてもよい。凹溝の断面形状としては特に限定されず、例えば、V字型、U字型、コの字型等が挙げられる。

上記凹溝の深さは、浅すぎると脱気性が低下し、深すぎるとシール不良が発生

しやすくなるので、 $5\sim500~\mu$  mが好ましく、 $20\sim70~\mu$  mがより好ましい。また、凹溝の幅は、狭すぎると脱気性が低下し、広すぎるとシール不良が発生しやすくなるので、 $20\sim100~\mu$  mが好ましい。更に、凹溝の配置間隔(ピッチ)は、狭すぎると脱気性が低下し、広すぎるとシール不良が発生しやすくなるので、 $0.1\sim10~\mu$  mが好ましく、より好ましくは、 $0.2\sim1~\mu$  mである。

本発明の第6の態様において、凹溝は、熱可塑性樹脂シートの少なくとも片面 に設けられていればよく、片面のみに設けられていてもよく、両面に設けられて いてもよいが、脱気性を確保するためには両面に設けられているのが好ましい。

本発明の第6の態様において、熱可塑性樹脂シートには、凹溝以外にも、その 両面に微細な凹凸からなる多数のエンポスが形成されている。該微細な凹凸の分 布は、規則的に設けられていてもよいし、不規則に設けられていてもよい。また、 凹凸における深さ及び高さは、すべて同じであってもよいし、異なっていてもよ い。

本発明の第6の態様は、上述の構成よりなるので、合わせガラス加工時の予備 圧着工程、特に扱き脱気法において、熱や加圧によりエンボスの凹凸が潰れても、 凹溝は最終段階まで残る。従って、充分な脱気を行うことができる。

予備圧着工程が扱き脱気法による場合、予備圧着工程における空気の抜けやすさは、凹部全体に対する凹溝の占める比率及び凹溝の平滑性のみに対して密接な関係があり、凸部の間隔、配置にはあまり影響しない。

本発明の第6の態様においては、押し出し方向に平行な凹溝を設けることにより、例えば、山脈状の凸形状を設け、格子状に脱気通路を設けた場合であって、

20

25

山脈に対して直角に脱気した場合であっても空気の通路を確保でき、そのため、 山脈に直角方向に脱気しても、空気を堰き止めることがないので空気溜まりが発 生しない。

更に、近年の合わせガラスの製造方法によれば、中間膜の巻き流れ方向(即ち、一般的には、熱可塑性樹脂シートの押出方向)に沿って合わせガラスを構成し、巻き流れ方向に沿って扱き脱気をすることが多いので、中間膜の巻き流れ方向に沿って凹溝を付与した方が、予備圧着工程の際、中間膜の周辺部のシール性が優れたものとなる。

また、合わせガラスの積層体を予備圧着する場合、多くの加工メーカーでは、 ガラスの湾曲による割れを防止するために、積層体をマルチロールに挿入する際 の初期スピードと離脱前のスピードとを通常のスピードより、明らかに遅くして 通すので、積層体の前後のシール状態は、積層体の前後に当たるエンボスの粗さ や凹溝が大きくても充分にシールすることができ、積層体の側端に凹溝がなけれ ば側端のシール性も問題とならない。

15 本発明の第7の態様は、少なくとも片面の凹部が、溝形状を有しており、該溝 形状は、断面積が一定であり、かつ、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝 が形成された深さ分布を有する合わせガラス用中間膜である。

本発明の第7の態様においては、少なくとも片面の凹部が、溝形状を有しており、該溝形状の断面積を一定に保ちつつ、溝の深さを部分的に浅くすることにより、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝が形成された深さ分布を有するので、減圧脱気方式における脱気工程において、減圧開始時には空気の通り道が確保され、昇温時には浅い部分がガラスと密着しやすくなりシール性が向上する。

上記最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝は、10mm以下の配置間隔 (ピッチ) で形成されていることが好ましい。このピッチが10mmを超えると、脱気工程において、合わせガラスの周辺部分の発泡が問題となることがある。より好ましくは、2mm以下の配置間隔である。

本発明の第7の態様においては、溝形状が、中間膜の流れ方向に付与されていることが好ましい。なお、本明細書において、「流れ方向」とは、合わせガラスの生産ライン上を合わせガラス積層体が移動する方向を意味する。それにより、

20

溝形状を中間膜に転写させるためのロール形状の成形が容易になるとともに、中間膜への転写も容易となる。また、扱き脱気方式における脱気工程において、空気の扱き方向が中間膜の流れ方向であることからも好ましい。

上記溝形状は、本発明の第7の態様の中間膜の少なくとも一方の表面に形成されていればよいが、両面に形成されるのが好ましい。溝形状が、本発明の中間膜の少なくとも片面に形成されると、例えば、ガラス内面の粗さ分布がある場合や黒セラ印刷による段差等を吸収する面のみに用いる場合、本発明の中間膜を用いることで発泡を防止することができる。

本発明の第7の態様の中間膜は、減圧脱気方式により脱気工程を行う場合に好 10 適に用いられるが、溝の粗さを細かくすること、例えば溝深さを30μm程度よ り小さくすることにより、扱き脱気方式における脱気工程を用いる場合にも使用 することができる。

上記溝形状を付与する方法としては、例えば、金属ロール又は平板(プレス板)の表面を、凸状(山脈状)に加工して、それを中間膜に転写させる方法が挙げられる。

また、上記溝形状において、溝の断面積を一定にして溝深さを変化させるためには、金属ロール又は平板(プレス板)の表面の山を、部分的に凹ませることにより可能であり、特に、特定形状のミルをこれらの表面に押しつけることにより溝深さを変化させる方法によれば、得られる溝の断面積を容易に一定に保つことができるので好ましい。これに対して、金属ロール又は平板(プレス板)の表面の山脈を、バイト等で削って山高さを減らすと、その部分の断面積は減少してしまうことになる。

本発明の中間膜は、合わせガラスを作製するために用いられる。少なくとも一対のガラス間に、本発明の中間膜を介在させ、一体化させることにより、合わせガラスを得ることができる。

上記ガラス板としては特に限定されず、例えば、無機ガラス;ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート等の有機ガラス板等が挙げられる。

上記合わせガラスの構成としては、本発明の中間膜が2枚のガラス板の間に挟まれていれば特に限定されず、ガラス板/中間膜/ガラス板よりなる三層構造に

限定されず、ガラス板/中間膜/ガラス板/中間膜/ガラス板等よりなる多層構造でもよい。

本発明の中間膜を用いて合わせガラスを製造する方法としては特に限定されず、 通常の合わせガラスの製造方法と同様に、少なくとも一対のガラス間に中間膜を 挟み、先ず予備圧着を行って脱気及び仮接着をした後、例えばオートクレーブ中 で本圧着を行うことにより、所望の合わせガラスを得ることができる。

本発明の中間膜として、例えば、可塑化ポリビニルブチラール樹脂シートから なる中間膜を用いて合わせガラスを製造する場合、例えば、次のような手順で予 備圧着と本圧着とを行えばよい。

予備圧着は、二枚の透明な無機ガラス板の間に中間膜を挟み、この積層体をニップロールに通し、例えば、圧力2~1000kPa、温度50~100℃の条件で扱いて脱気しながら予備圧着する方法(扱き脱気法)、又は、上記積層体を入れたゴムバックを排気系に接続して-40~-75kPaの真空(絶対圧力36~1kPa)に吸引減圧しながら温度を上げ、60~100℃で予備圧着する方法(減圧脱気法)等により行われる。

予備圧着された積層体は、常法によりオートクレーブを用いるか、又は、プレスを用いて、温度  $120\sim150$  ℃、圧力  $200\sim150$  0 k P a の条件下で本圧着され、合わせガラスが製造される。

このようにして得られる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

20

25

# 発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

#### (実施例1)

ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700、残存アセチル基1モル%、ブチラール化度65モル%)100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールージー2ーエチルブチレート40重量部を添加混合し、この混合物を押出機により溶融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート(PVBシート)を得た。

一対のエンボスロールのうち、一方の金属ロール表面に刻線状のエンボス模様 (凹凸模様)を有するエンボス形成用の彫刻ミル(マザーミル)を押し付け、金属ロールと彫刻ミルとを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、刻線状のエンボス模様が規則的に形成されたエンボスロールを製作した。なお、彫刻ミルのエンボスの配置間隔は250μmであった。

また、上記一対のエンボスロールのうち、他方の金属ロール表面に刻線状のエンボス模様を有する彫刻ミル(マザーミル)を押し付け、金属ロールと彫刻ミル とを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。 次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、刻線状のエンボス模様が規則的に形成されたエンボスロールを作製した。なお、上記彫刻ミルのエンボスの配置間隔は320μmであった。

15 上記で得られたPVBシート(0.76mm厚)を上記で得られた一対のエンボスロールに通して、両面に刻線状のエンボス模様が規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。

#### (実施例2)

20 一方の彫刻ミル(マザーミル)のエンボスの配置間隔を300μmとし、他方の彫刻ミル(マザーミル)のエンボスの配置間隔を375μmとしたこと以外は実施例1の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボス模様が規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。

#### 25 (実施例3)

一方の彫刻ミル(マザーミル)のエンポスの配置間隔を $300\mu$ mとし、他方の彫刻ミル(マザーミル)のエンボスの配置間隔を $430\mu$ mとしたこと以外は実施例1の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボス模様が規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異な

る合わせガラス用中間膜を製造した。

図1に実施例1~3で得られた合わせガラス用中間膜の表面、裏面及び断面の エンボス模様(凹凸模様)を模式的に示した。

#### (比較例1)

5 両方の彫刻ミル(マザーミル)のエンボスの配置間隔を300μmとしたこと 以外は実施例1の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボス模様が規則的に形 成され、かつ、両面のエンボスの配置間隔が同一である合わせガラス用中間膜を 製造した。

図2に比較例1で得られた合わせガラス用中間膜の表面、裏面及び断面のエン 10 ボス模様(凹凸模様)を模式的に示した。

## (実施例4)

ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700、残存アセチル基1モル%、ブチラール化度65モル%)100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールージー2-エチルブチレート(3GH)40重量部を添加混合し、この混合物を押出機により溶融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラール樹脂シート(PVBシート)を得た。

一対のエンボスロールのうち、一方の金属ロール表面に半球状のエンボス模様を有する彫刻ミル(マザーミル)を押し付け、金属ロールと彫刻ミルとを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、半球状のエンボスが規則的に形成されたエンボスロールを作製した。なお、彫刻ミルのエンボスの配置間隔は200μmであった。

また、上記一対のエンボスロールのうち、他方の金属ロール表面に半球状のエンボス模様を有する彫刻ミル(マザーミル)を押し付け、金属ロールと彫刻ミルとを回転させることにより、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写した。次いで、彫刻ミルをそのエンボス模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順次移動させ、上記と同様の操作で、彫刻ミルのエンボス模様を金属ロールに転写して、半球状のエンボスが規則的に形成されたエンボスロールを作製した。なお、彫刻

ミルのエンボスの配置間隔は300μmであった。

上記で得られたPVBシート(0.76 mm厚)を上記で得られた一対のエンボスロールに通して、両面に半球状のエンボスが規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。得られた中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様を図3に示した。

## (実施例5)

5

彫刻ミル(マザーミル)のエンボス模様を刻線状とし、かつ、一方の彫刻ミルのエンボスの配置間隔を $250\mu$ mとし、他方の彫刻ミルのエンボスの配置間隔  $6300\mu$ mとしたこと以外は実施例4の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボスが規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。得られた中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様を図4に示した。

### (実施例6)

15 彫刻ミル(マザーミル)のエンボス模様を格子状とし、かつ、一方の彫刻ミルのエンボスの範囲間隔を200μmとし、他方の彫刻ミルのエンボスの配置間隔を400μmとしたこと以外は実施例4の場合と同様にして、両面に格子状のエンボスが規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。得られた中間20 膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様を図5に示した。

### (実施例7)

一方の彫刻ミル(マザーミル)のエンボス模様を配置間隔が $220\mu$ mの刻線状とし、他方の彫刻ミルのエンボス模様を配置間隔が $320\mu$ mの格子状としたこと以外は実施例4の場合と同様にして、一方の面に刻線状のエンボスが規則的に形成され、また、他方の面に格子状のエンボスが規則的に形成され、かつ、一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なる合わせガラス用中間膜を製造した。

#### (比較例2)

25

両方の彫刻ミル (マザーミル) のエンボス模様を配置間隔が210 µmの刻線

状としたこと以外は実施例4の場合と同様にして、両面に刻線状のエンボスが規則的に形成され、かつ、両面のエンボスの配置間隔が同一である合わせガラス用中間膜を製造した。得られた中間膜の表面、裏面及び断面のエンボス模様を図6に示した。

実施例1~7及び比較例1及び2で得られた9種類の中間膜について、それぞれの面のエンボスの平均表面粗さ(Rz)及び平均配置間隔(Sm)を以下の方法で測定した。結果を表1及び表2に示した。

## 【Rzの測定】

ディジタル型の触針電気式表面粗さ測定器(商品名「SE-2000」、小坂 10 研究所社製)により、円錐状の触針(先端曲率半径  $5~\mu$  m、頂角 9~0 度)を用い、 JIS~B~0601 に準拠して、中間膜のそれぞれの面のエンボスの1~0 点平 均表面粗さ  $\{R~z~(\mu\,m)\}$  を測定した。

## [Smの測定]

顕微鏡で観察して、中間膜のそれぞれの面のエンボスの平均配置間隔 {Sm 15 (μm)}を測定した。

また、上記9種類の中間膜について、モアレ現象の出現の有無を以下の方法で 評価した。結果を表1及び表2に示した。

# [モアレ現象の出現の有無]

中間膜をゆっくり連続的に移動させながら、目視で観察し、モアレ現象の出現 20 の有無を確認した。

次いで、上記9種類の中間膜のそれぞれを使用して、次の2つの方法(扱き脱気法及び減圧脱気法)で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、9種類の合わせガラスを作製した。

# (a) 扱き脱気法

25 中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ3mm)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体を加熱オーブン中で、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ60℃、70℃及び80℃となるように加熱した後、ニップロール(エアーシリンダー圧力350kPa、線速度10m/分)に通して予備圧着を行った。

#### (b) 減圧脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦 $30 \text{ cm} \times$ 横 $30 \text{ cm} \times$ 厚さ3 m m)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体をゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60 kPa (絶対圧力16 kPa)の減圧下で $10 \text{ 分間保持し、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ<math>60 \text{ C}$ 、80 C及び100 Cとなるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。

上記(a)及び(b)の方法で予備圧着された積層体を、それぞれオートクレープ中で、温度140℃、圧力1.3MPaの条件下に10分間保持した後、50℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

上記で得られた9種類の合わせガラスのそれぞれのベークテストを下記の方法 で行って、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表1及び表2に示した。 〔合わせガラスのベークテスト〕

15 合わせガラスを140℃のオープン中で2時間加熱した。次いで、オープンから取り出して3時間放冷した後、合わせガラスの外観を目視で観察し、合わせガラスに発泡(気泡)が生じた枚数を調べて、脱気性を評価した。なお、テスト枚数は各100枚とした。発泡が生じたガラスの枚数が少ないほど、脱気性及びシール性に優れることになる。

表 1

İ		20		15			Ü	10		₩	海海 海海		5	比较例	
Г				K   :				97.04		Ş	# #	T	₹	AL COLUMN	1
	H	エンボスの複様		壓	刻線状		<u> </u>	別解状		<b>R</b>	対策の	1	<b>k</b>	<u>ا</u> کو	
n ==	ਮੇ	エンポスの配置		赵	规则的		数	規則的		#X	規則的		鉄	规则的	
<b>*</b> 0	<b>8</b> K	平均表面租き:Rz (μm)	Rz (um)	e.	36. 2		4	3. 2		4	4.5	-	4	0.6	
u N	層	平均配置間隔: Sm (μm)	: Sm (µm)	2.5	2.0		3 0	2 . 2		3.0	3.0		305.	5.0	!
<b>*</b> ×	×	平均表面組さ:R2	: R z (иm)	4	2.5		7	3.0		က	9. 4		7	1. 2	
	旧	平均配置間隔: Sm (μm)	: Sm (иш)	3.2	4.0		3.7	2.5		4 3	1. 2		3.0	5.0	
l w	12	モアン現象の出現の有無	##	兼	۳.		兼	۳.		兼	٦		**		
			极き脱気法	0 9	1 0	0 8	0 9	7 0	8 0	8 0	7 0	8 0	0 9	7.0	8 0
1	羅	小金田林随两(C)	鎮压脱気法	0 9	8 0	100	0 9	8 0	100	0 9	0 80	901	6 0	0 8	8
1 40 '	₽¢	合わせガラスの	扱き脱気法	0	-	0	2	0	0	0	-	0	0	2	0 :
ت ہ	と発	ペークテスト (発泡枚数/100 枚)	減圧脱気法	_	0	0	0	0	0	-	0	-	_	0	<u> </u>

25

表 2

0 100 00 0 2 Ġ 2 比較例2 0 有り 刻線伏 規則的 0 如線状 4 0. 15. 10. œ 0 0 0 5 9 9 0 0 9 0 9 S 実施例7 0 0 刻線状 格子状 規則的 0 **.** 4 2. 4 0. 無 œ 0 ~ ~ ~ 0 0 9 8 0 0 8 10 œ 来拖的6 0 2 S 0 0 0 每十次 格子状 規則的 421. 44. 亷 00 39. 213. 0 0 0 9 9 0 0 0 100 œ 0 2 ໝ 実施例5 0 0 無つ 0 刻線状 刻線状 規則的 15 ы . 0 2. œ ш . S. വ 0 0 မွ ဖ 0 0 0 8 œ 0 S 0 2 実施例4 0 0 0 規則的 無つ 半球状 半球状 10. 310. α. œ 9 0 0 0 20 ø 8 減田脱気法 扱き脱気法 減圧脱気法 板を脱気法 我面 集配 数面 集団 表面 エンポスの平均配置回路 {Sm (μm)} エンポスの平均表面組さ モアレ現象の出現の有無 赘 {Rz (um) } エンボスの配置 合わせガラスの ベークテスト (発泡枚数/100 む 予備圧着温度(°C) エンボス模様 25

中間膜のエンボス

表1及び表2から明らかなように、本発明による実施例1~7の合わせガラス用中間膜は、いずれもモアレ現象の出現がなかった。これは、裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であったことを示している。また、上記中間膜を用いて作製された実施例1~7の合わせガラスは、扱き脱気法における各予備圧着温度及び減圧脱気法における各予備圧着温度のいずれの場合についても、ベークテスト時の気泡による発泡枚数(不良枚数)が少なかった。これは、予備圧着工程における脱気性が優れていたことを示している。

これに対し、エンボスの配置間隔が同一( $300\mu$ m)の二本の彫刻ミル(マザーミル)により作製された一対のエンボスロールを用いて製造された比較例1の合わせガラス用中間膜、及び、エンボス模様(刻線状)及びその配置間隔が同一( $210\mu$ m)の二本の彫刻ミル(マザーミル)により作製された一対のエンボスロールを用いて製造された比較例2の合わせガラス用中間膜は、予備圧着工程での脱気性は優れていたものの、モアレ現象の出現が認められた。これは、裁断時や合わせ加工時の作業性が不良であったことを示している。

# 15 (実施例8)

10

20

熱可塑性樹脂シートとして「DXN膜」(ポリビニルブチラール樹脂シート、 積水化学工業社製)を用いた。

三角形斜線型ミル(由利ロール社製)を用いて表面にミル加工を施した金属ロールと45~75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記DXN膜をこの凹凸形状転写装置に通し、DXN膜の一方の面に底辺が連続した溝形状となるエンボス凹部を付与した。このときの転写条件は下記の条件であった。

DXN膜の温度:常温

ロール温度:130℃

25 線速:10m/分、

プレス線圧:500kPa

次いで、DXN膜の他方の面にも上記と同様の操作を施し、底辺が連続した溝 形状を有するエンポス凹部と頭頂に平面形状を有するエンポス凸部とからなるエ ンポスが両面に刻線状の模様で規則的に形成された中間膜を得た。なお、得られ た中間膜のエンボス凸部の配置間隔(ピッチ)は $300\mu m$ 、エンボス凸部頭頂の平面形状の幅は $250\mu m$ 、エンボス凹部の幅は $50\mu m$ であった。

#### (実施例9)

エンボス凸部の配置間隔(ピッチ)を $300\mu$ m、エンボス凸部頭頂の平面形状の幅を $160\mu$ m、エンボス凹部の幅を $140\mu$ mとしたこと以外は実施例8の場合と同様にして、底辺が連続した溝形状を有するエンボス凹部と頭頂に平面形状を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に刻線状の模様で規則的に形成された中間膜を得た。

図7に実施例8及び実施例9で得られた中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を 10 模式的に示した。

#### (実施例10)

エンボス凸部の配置間隔(ピッチ)を $200\mu$ m、エンボス凸部頭頂の平面形状の幅を $50\mu$ m、エンボス凹部の幅を $150\mu$ mとし、エンボスの模様を格子状としたこと以外は実施例8の場合と同様にして、底辺が連続した溝形状を有するエンボス凹部と頭頂に平面形状を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に格子状の模様で規則的に形成された中間膜を得た。

#### (実施例11)

15

20

エンボス凸部の配置間隔(ピッチ)を $500\mu$ m、エンボス凸部頭頂の平面形状の幅を $400\mu$ m、エンボス凹部の幅を $100\mu$ mとし、エンボスの模様を格子状としたこと以外は実施例8の場合と同様にして、底辺が連続した溝形状を有するエンボス凹部と頭頂に平面形状を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に格子状の模様で規則的に形成された中間膜を得た。

図8に実施例10及び実施例11で得られた中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を模式的に示した。

## 25 (比較例3)

エンボス凸部頭頂に平面形状を付与せず、エンボス凸部の配置間隔(ピッチ)及びエンボス凹部の幅を200μmとしたこと以外は実施例8の場合と同様にして、底辺が連続した溝形状を有するエンボス凹部と頭頂に平面形状を有しないエンボス凸部とからなるエンボスが両面に刻線状の模様で規則的に形成された中間

膜を得た。図9に比較例で得られた中間膜のエンボス模様(凹凸模様)を模式的に示した。

実施例8~11及び比較例3で得られた5種類の中間膜のそれぞれについて、エンボスの平均表面粗さ(Rz)を実施例1と同じ方法で測定した。結果を表3に示した。

また、上記5種類の中間膜のそれぞれを使用して、以下に示すように、減圧脱気法で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、5種類の合わせガラスを作製した。

## [減圧脱気法]

中間膜を2枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ30cm)の間に挟み、はみ出た部分を切取り、合わせガラス積層体を作製した。得られた合わせガラス積層体をゴムバッグに移した。ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60kPa(絶対圧力16kPa)の減圧下で10分保持し、合わせガラス積層体の温度(予備圧着温度)が70℃となるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。なお、予備圧着時の脱気開始温度は、40℃、50℃及び60℃の3条件で行った。

## 〔本圧着〕

上記方法で予備圧着された合わせガラス積層体をオートクレープ内に入れ、温度 140  $\mathbb{C}$ 、圧力 1300  $\mathbb{K}$   $\mathbb{P}$   $\mathbb{A}$  の条件下で 10 分間保持した後、50  $\mathbb{C}$  まで温度を下げ、大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。上記で得られた 5 種類の合わせガラスのそれぞれのベークテストを実施例 1 と同じ方法で行って、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表 3 に示した。

25

表3

		25		20				15				10				5			
- 1				אייט	<b>東</b>		₩	<b>実施列</b> 9		<del>8</del> K	実施列 10		│ <del>(e</del> K	实施列11		丑	LLtx列3		
	Н	エンボスの複雑	**	45%	刻除水		松	刻陶水		盔	格子状		ね	格子状		兩	刻剧战		
#	H	エンボスの配置(分布)	國 (3)在(	#72	規則		#	棚的		#	規則		散	規則的		猫	觀的		
蹈戰		CHARONEL .	凸部O包包配隔(a: μm)		300		3	300		2	200		က	500		2	200		
6 H	<u> </u>		凸邮件面的状态幅(b: uin)		250			160			5.0		4	400					
ンボ	ボス	b/a (%)	8		8 3.	3		5 3.	3		25.	0		8 0.	0	ŀ	-		
K	0万		<b>山町の場</b> (c: μm)		5.0		-	4 0			5 0		-	100		2	200		
	<u>¥</u>		平均表面相 (R2: μm)		4 2.	5	į	4 0.	ည		4 5.	2		4 1.	2		6 0.	2	
		域田党刘法	脱灰時数温度(CC)	4 0	50	0.9	4 0	5.0	0 9	4 0	5.0	09	4 0	5.0	09	4.0	5 0	0 9	
岸面;		<b>张</b>	子佛王著温度(°C)	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7 0	7.0	2.0	7.0	7.0	0 2	10	7.0	7 0	7.0	_
とり	<del></del>	わせガラス発送が	合わせガラスのペークテスト (発育校数/100枚)	0	0		0	-	S	-	3	1.0	1	0	1	10	50	9.0	

表3から明らかなように、本発明による実施例8~11の中間膜を用いて作製した合わせガラスは、減圧脱気法による予備圧着時の脱気開始温度が40  $\mathbb C$ 、50  $\mathbb C$ 及び60  $\mathbb C$ のいずれの場合でもベークテスト時の気泡による発泡枚数(不良枚数)が少なかった。これは、予備圧着工程において脱気開始温度を厳密に制御しなくとも、また、予備圧着温度を特に高めることなく通常の予備圧着温度(70  $\mathbb C$ )でも、優れた脱気性を発揮したことを示している。

これに対し、エンボス凸部の頭頂に平面形状を付与しなかった比較例3の中間膜を用いて作製した合わせガラスは、予備圧着工程における脱気開始温度が50℃以上の場合、ベークテスト時の気泡による発泡枚数(不良枚数)が極めて多かった。これは、予備圧着工程において脱気開始温度を少なくとも50℃未満に厳密に制御しないと、合わせガラス積層体の周縁部シール先行現象が発生し、合わせガラス積層体の中央部近傍に存在する空気を充分に脱気することができないことを示している。

(実施例12~16)

15 〔合わせガラス用中間膜の作製〕

エンボス形状が付与できるように、種々のエンボスロールを用意した。

熱可塑性樹脂シートとして、DXN膜(ポリビニルブチラール樹脂シート、積水化学工業社製)を用意した。実施例12~16で用いたDXN膜のRaを表4に示した。

20 エンボスロールとゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記DXN膜をこの凹凸形状転写装置に通し、両面にエンボス形状を有する合わせガラス用中間膜を得た。このときの転写条件を、下記に示した。

DXN膜の温度:常温

ロール温度:130℃

25 線速:10m/分

プレス線圧:500kPa

実施例12~16で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの形状(凹凸の 形状)を表4に示した。

また、図10に、実施例12及び実施例13で得られた合わせガラス用中間膜

のエンボスの模様(凹凸の模様)を、図11に、実施例14及び実施例15で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様(凹凸の模様)を、図12に、実施例16で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様(凹凸の模様)を模式的に示した。

### 5 (比較例4)

[合わせガラス用中間膜の作製]

熱可塑性樹脂シートとして、定法で押し出した凹凸のないノーエンボスシート (ポリビニルブチラール樹脂シート)を用いたこと以外は、実施例と同様に操作を行い、両面にエンボス形状を有する合わせガラス用中間膜を得た。

10 比較例4で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの形状(凹凸の形状)を表4に示した。

図13に、比較例4で得られた合わせガラス用中間膜のエンボスの模様(凹凸の模様)を模式的に示した。

実施例及び比較例で得られた6種類の合わせガラス用中間膜について、エンボスの平均表面粗さ(Ra)は下記の方法で、平均表面粗さ(Rz)は実施例1と同じ方法で測定し、中間膜の取扱い作業性及び自着性を評価した。結果を表4に示した。

# [Raの測定]

15

25

ディジタル型の触針電気式表面粗さ測定器(商品名「SE-2000」、小坂 20 研究所社製)により、楔状の触針(先端幅 $1000\mu$ m、対面角 $90^\circ$ )を用いて、JIS B 0601に準拠して、合わせガラス用中間膜のそれぞれの面のエンボスの10点平均表面粗さ  $\{Ra(\mu m)\}$  を測定した。

また、上記6種類の合わせガラス用中間膜のそれぞれを使用して、実施例8と同じようにして、減圧脱気法により予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、6種類の合わせガラスを作製した。

上記で得られた6種類の合わせガラスについてベークテストを実施例1と同じ 方法で行って、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表4に示した。 表 4

2 0 7 0 40 60 60 规则的、平行 200 ល 2 2540 1 2. . ເນ 刻線状 7.0 比較例 1 0 2 5 ~ . ວ 7.0 4 5 0 9 7 0 規則的、90。回転 S 100 刻像状 200 100 7 0 5 0 50. 65 2 0 9 . 3 7 0 4 0 က 9 7 0 4 規則的、平行 500 400 100 0 980 刻線状 9 7.0 8 10 0 15 8 4 0 7 0 N 7 0 0 9 0 N 実施例 规则的、平行 300 250 刻線状 670 50 7 0 ຜ 8 0 0 7 ŝ ß 4 0 7 0 7.0 0 9 0 ß 規則的、平行 400 100 ഗ 500 刻梯状 50 7 0 40. 8 3 13 4 0 7 0 0 2.0 9 規則的、平行 300 250 350 刻線状 5 0 7 0 8 83 50 4. 0 ব 7 0 4.0 0 1000μm触針による平均表面 粗さ (Ra:μm) 5μm触針による平均表面相き වි ව් (m n : 合わせガラスのペークテスト (発泡枚数/100枚) ( m # : (g/15cm) 主凹部の幅 (c: μ四) 脱気開始温度 予備圧着温度 <u>م</u> <u>в</u> 主凸部平面部の幅 土口部のアッチ エンボスの分布 エンボスの模様 (%) (R z : µ m) 域圧脱気 の条件 25 自着力 エンポスの形状 中間膜のエンボス

15

20

評価結果

表4から明らかなように、実施例で作製した合わせガラスは、減圧脱気法による予備圧着時の脱気開始温度が40  $\mathbb C$ 、50  $\mathbb C$   $\mathbb C$ 

10 一方、微細凹凸がなく、平面部の幅の凸部のピッチに対する比率(b / a ) が、2 0 %未満である比較例の合わせガラス用中間膜は、実施例の合わせガラス用中間膜と比べて自着力が非常に高く、また、この合わせガラス用中間膜を用いて作製した合わせガラスは、予備圧着工程における脱気開始温度が50℃以上の場合、ベークテスト時の気泡による発泡枚数(不良枚数)が、実施例と比べて非常に多かった。これは、予備圧着工程において、脱気開始温度を少なくとも50℃未満に厳密に制御しないと、合わせガラス積層体の周縁部シール先行現象が発生し、合わせガラス積層体の中央部近傍に存在する空気は充分に脱気されないことを示している。

(実施例17~20、比較例5)

25

20 各種のエンボス形状を形成するために種々のエンボスロールを用意した。

一対のエンボスロールのうち、一本の金属ロール表面にエンボス形成用の縦柄用彫刻ミル(マザーミル)を押しつけ、金属ロールと彫刻ミルを回転させることにより、彫刻ミルの凹凸模様を金属ロールに転写し、その後彫刻ミルをその凹凸模様の配列単位で金属ロールの軸方向に順にずらし、上記と同様な操作で、彫刻ミルの凹凸模様を金属ロールに転写して、刻線縦柄の凹凸模様が規則的に形成されたエンボスロールを作製した。更に実施例19及び実施例20では横柄用彫刻ミルを用いて縦柄用彫刻ミルの転写圧の1/10の荷重にて上記金属ロール上に横柄を付与した。この際、それぞれの配置や寸法は顕微鏡により観察した。

熱可塑性樹脂シートとしては、「DXN膜」(ポリビニルブチラール樹脂シー

ト、積水化学工業社製)を用いた。

上記エンボスロールとゴムロールとを一対で用意し、エンボスロールを13 0℃とし、上記熱可塑性樹脂シートを通し所定のエンボス形状を得た。

実施例17及び実施例18の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図14に示したとおりであり、実施例19及び実施例20の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図15に示したとおりであり、比較例5の合わせガラス用中間膜に形成されたエンボスの形状は図16に示したとおりであった。各エンボスの凸部の配置間隔、凹部の深さ、分断壁の配置間隔、及び、分断壁の高さは表5に示したとおりであった。

10 実施例 $1.7 \sim 2.0$  及び比較例5 で得られた5 種類の中間膜のそれぞれについて、エンボスの平均表面粗さ(R.z)を実施例1 と同じ方法で測定した。結果を表5 に示した。

また、上記5種類の中間膜のそれぞれを使用して、以下に示すように、減圧脱 気法で予備圧着を行い、次いで本圧着を行って、5種類の合わせガラスを作製し た。

#### [減圧脱気法]

15

20

25

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦 $30 \text{ cm} \times$ 横 $30 \text{ cm} \times$ 厚さ3 m m)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、得られた合わせガラス積層体をゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60 kPa (絶対圧力16 kPa) の減圧下で10 分間保持し、合わせガラス積層体の温度(予備圧着温度)が一定の温度となるように加熱した後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。上記予備圧着時の脱気開始温度は50 CCとし、予備圧着温度は60 C、65 CDび70 CO3条件下とした。

#### 〔本圧着〕

上記方法で予備圧着された合わせガラス積層体をオートクレーブ内に入れ、温度 140  $\mathbb{C}$ 、圧力 1300  $\mathbb{k}$   $\mathbb{P}$  a の条件下で 10 分間保持した後、 50  $\mathbb{C}$  まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

得られた 5 種類の合わせガラスに対して、実施例 1 と同じ方法でベークテストを行い、予備圧着工程での脱気性を評価した。結果を表 5 に示した。

表 5

Ξ
J
_

10

15

			ı				₩.	実施例				1		五	比較例	
		•		12	$\vdash$	-	81	<u> </u>	19	Γ		20		-	5	. 1
	#\\ 	ナンボュの指統	环	如線状	١.	家	巡職状		格子状	$^{\star}$	簭	格子状		刻象	刻線状	
	¥/,	インシンが来 トンボルら啓顕	TEX.	規則的	力	類	規則的		規則的	5	联	規則的		規	規則的	
H H		小句の配置間隔 (mm)	1	320		N.	200	_	350			200	_	3	350	
	<b>н</b> :	に限ら節が (エヨ)		2	T	2	22	_	20			50		S.	20	
ボ! 臓(		1044		120		(S)	200	L	1000		-	1000		Ċ		
S	— ¥ ' ∖			25		2	25	_	25			25				
	9	1		45.5	<u> </u>	₩.	43.6	_	44.5		4	42.7		44	44.2	
	がいる。	の語	L	က္က		"	20	_	20			20			20	
非龟	の条件	<u></u>	09	65	70	9 09	65 70	0 60	65	70	09	99	202	09	65 70	-
提出	合むなが	合わせガラスのペークテスト(政治事業ノーの事)	2	4	1	2	7	1 4	က	2	S	3	2	98	15 5	
+	28.2	以表/ 100元/		٦	1	1	+	-	4		]	1	1	1	$\left\{ \right.$	•

20

25

# (実施例21)

金属ロール表面を彫刻ミル(直線状の三角形斜線型カップミル)によりミル加工を行って、金属ロール表面に、断面が三角形状の多数の凹溝(直線状)と、これ等の凹溝に対する多数の凸条(直線状)とから構成された凹凸模様(規則的)

を形成し、更にガラスピーズ(#46)を用いて100kPaの空気圧で約30cmの距離からブラスト処理を行って、エンポスロールを作製した。

一方、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700、残存アセチル基1モル%、ブチラール化度65モル%)100重量部に、可塑剤としてトリエチレングリコールージー2-エチルブチレート40重量部と、接着力調整剤として酢酸マグネシウム0.2重量部を混合し、この混合物を押出機により溶融混練し押出金型よりシート状に押出して、厚さ0.76mmのポリビニルブチラールシートを成形した。

上記一対のエンボスロール及びポリビニルブチラールシートを用い、常法により、ポリビニルブチラールシートの両面に、断面が三角形状の多数の凸条(直線状)と、これ等の凸条に対する多数の凹溝(直線状)とから構成された凹凸模様(規則的)が形成され、各凹溝が同一水準にない中間膜を製造した。この中間膜の含水率は0.4~0.5重量%に調整した。

# (実施例2.2)

- 15 金属ロール表面を彫刻ミル(ピラミッド型カップミル)によりミル加工を行って、金属ロール表面に四角錐からなる多数の凹部と、これ等の凹部に対する多数の凸部とから構成された凹凸模様(規則的)を形成し、更にガラスビーズ(#20)を用いて100kPaの空気圧で約30cmの距離からブラスト処理を行って、エンボスロールを作製した。
- 20 このエンボスロールを用いたこと以外は、実施例21と同様にして、ポリビニルブチラールシートの両面に、四角錐からなる多数の凸部と、これ等の凸部に対する多数の凹部とから構成された凹凸模様(規則的)が形成され、各凹部は同一水準にない中間膜を製造した。この場合、互いに隣接する凸部との間の凹部は格子状の溝状に形成された。

#### 25 (実施例23)

金属ロール表面を彫刻ミル(波状の三角形斜線型カップミル)によりミル加工を行って、金属ロール表面に、断面が三角形状の多数の凹溝(波状)と、これ等の凹溝に対する多数の凸条(波状)とから構成された凹凸模様(不規則)を形成し、更にガラスピーズ(#20)を用いて1kgの空気圧で約30cmの距離か

らブラスト処理を行って、エンボスロールを作製した。

このエンボスロールを用いたこと以外は、実施例21と同様にして、ポリビニルブチラールシートの両面に、断面が三角形状の多数の凸条(波状)と、これ等の凸条に対する多数の凹溝(波状)とから構成された凹凸模様(不規則)が形成され、各凹部は同一水準にない中間膜を製造した。

### (比較例6)

10

15

20

金属ロール表面を彫刻ミル(直線状の三角形斜線型カップミル)によりミル加工を行って、金属ロール表面に、断面が三角形状の多数の凹溝(直線状)と、これ等の凹溝に対する多数の凸条(直線状)とから構成された凹凸模様(規則的)を形成して、エンボスロールを作製した。

このエンボスロールを用いたこと以外は、実施例21と同様にして、ポリビニルブチラールシートの両面に、断面が三角形状の多数の凸条(直線状)と、これ等の凸条に対する多数の凹溝(直線状)とから構成された凹凸模様(不規則)が形成され、各凹部は全て同一水準である中間膜を製造した。

上記各実施例及び比較例で得られた中間膜について、エンボスの表面粗さ(R z) は実施例1と同じ方法で、エンボスの陰原型のR z v は下記の方法で、それぞれ測定した。また、これらの中間膜を用いて、下記の方法で合わせガラスを作製し、これらの合わせガラスについて、実施例1と同じ方法でベークテストを行い、予備圧着工程での脱気性及びシール性を評価した。その結果をまとめて表6に示した。

#### [Rzvの測定]

一般型取り用シリコーンRTV KE-20 (信越化学社製)を使用し、上記中間膜のエンボスの陰原型をとり、この陰原型の表面粗さRzv を、図17に示す楔状の触針 (先端幅1000 $\mu$ m、対面角90°)を用い、この触針を先端幅に対して直交する方向に移動させ、JIS B 0601に基づいて表面粗さRzv を測定した。

#### (脱気性及びシール性の評価)

次の方法(扱き脱気法及び減圧脱気法)により予備圧着を行い、その後本圧着を行って、合わせガラスを作製した。

### (a) 扱き脱気法.

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央に対して周辺が1mm湾曲しているガラス板)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体を加熱オープン内で、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ60  $\mathbb{C}$ 、70  $\mathbb{C}$ 、80  $\mathbb{C}$  になるように加熱し、その後ニップロール(エアーシリンダー圧力350 k  $\mathbb{P}$  a、線速度10 m/分)に通すことにより予備圧着を行った。

# (b) 減圧脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央に対して周辺が1mm湾曲しているガラス板)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体をゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60kPa (絶対圧力16kPa)の減圧下で10分間保持し、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ60  $\mathbb{C}$ 、80  $\mathbb{C}$ 、100  $\mathbb{C}$  になるように加熱し、その後、大気圧に戻して予備圧着を終了した。

上記(a)及び(b)の方法で得られた積層体を、それぞれオートクレープ内で、温度 140  $\mathbb{C}$ 、圧力 1.3 M P a の条件下に 10 分間保持した後、 50  $\mathbb{C}$  まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

20

10

# 表 6

5

10

15

	実施	例 2	1	実施	例 2	22	実施	例 2	:3	比較	E 1991 6	5
凸部の形状 溝の形状 配置	三角直線規則	状		四角格子規則	•	Ť	三角波状不拔		9	三角直線規則	状	₹
エンボスの表面粗 さRz (μm)	4 8	. 5		4 6	. 4		5 2	. 1		5 3	4. 4	<b>!</b>
陰原型の表面粗さ Rzv (μm)	1 2	2. 2		1 2	. 9	}	1 3	1. {	6	9	). {	5
Rzv/Rz	0.	2 5	5 2	0.	2 7	7 8	0.	2 (	3 1	0.	1 7	7 8
予備圧着温度(℃) ・扱きロール法 ・真空バッグ法	60 60	70 80	80 100	60 60	70 80	80 100	60 60	70 <b>80</b>	80 100	60 60	70 80	80 100
合わせガラスのベ ークテスト (発泡 枚数)(枚/100 枚)										45	00	
・扱きロール法 ・真空バッグ法	4 3	2	0	5 2	2	0	5	2	0	45 15	22 6	0

20

# (実施例24)

熱可塑性樹脂シートとしてDX膜(積水化学工業社製)を用いた。

三角形斜線型ミル(75mesh、80depth、由利ロール社製)を用いて表面にミル加工を施した金属ロールと45~75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記DX膜をこの凹凸形状転写装置に通し、DX膜の一方の面にエンボス凹部が連続した溝形状となる溝形状を付与した。このときの転写条件は下記の条件であった。

DX膜の温度:常温

ロール温度:140℃

線速:10m/分、

プレス線圧: 2500kPa

次に、上記三角形斜線型ミルと逆向きの三角形斜線型ミル(75mesh、8 0 depth、由利ロール社製)を用いて表面にミル加工を施した金属ロールと 45~75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状 転写装置として用い、上記一方の面に溝形状が付与されたDX膜をこの凹凸形状 転写装置に通し、連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与した。このとき の転写条件は下記の条件であった。

10 D X 膜の温度:常温

ロール温度:110℃

線速:10m/分、

プレス線圧:2000kPa

次いで、DX膜の他方の面にも上記と同様の操作を施し、連続した溝形状を有 15 するエンボス凹部と分断部を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に形 成された合わせガラス用中間膜を得た。

(実施例25)

20

連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与したときの転写条件を下記の条件としたこと以外は実施例24の場合と同様にして、連続した溝形状を有するエンボス凹部と分断部を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に形成された合わせガラス用中間膜を得た。

DX膜の温度:常温

ロール温度:120℃

線速:10m/分

25 プレス線圧:2000kPa

(実施例26)

エンボス凹部が連続した溝形状となる溝形状を付与したときの転写条件を下記 の条件(1)とし、連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与したときの転 写条件を下記の条件(2)としたこと以外は実施例24の場合と同様にして、連 続した溝形状を有するエンボス凹部と分断部を有するエンボス凸部とからなるエンボスが両面に形成された合わせガラス用中間膜を得た。

### 条件(1)

DX膜の温度:常温

5 ロール温度:120℃

線速:10m/分、

プレス線圧: 2500kPa

# 条件(2)

DX膜の温度:常温

10 ロール温度:130℃

線速:10m/分、

プレス線圧:2000kPa

(比較例7)

15

連続したエンボス凸部に格子状の分断部を付与しなかったこと以外は実施例24の場合と同様にして、連続した溝形状を有するエンボス凹部と分断部を有しないエンボス凸部とからなるエンボスを両面に形成された合わせガラス用中間膜を得た。

実施例 $24\sim26$ 及び比較例7で得られた4種類の合わせガラス用中間膜の性能 $\{(1)$  平均表面粗さ(Rz)、(2) 膜滑り性、(3) 耐ブロッキング性、

20 (4) ベークテスト を以下の方法で評価した。結果を表7に示した。

(1) 平均表面粗さ(Rz)

実施例1と同様にして測定した。

#### (2) 膜滑り性

 $50\,\mathrm{cm} \times 50\,\mathrm{cm}$ に裁断した中間膜を表面が平滑なガラス板(縦 $50\,\mathrm{cm} \times$ 横 $50\,\mathrm{cm}$ )の上に水平に置き、その上に滑り用ガラス板(縦 $10\,\mathrm{cm} \times$ 横 $10\,\mathrm{cm} \times$ 厚さ 2.  $5\,\mathrm{mm}$ )を載せ、30秒後にバネ秤で滑り用ガラス板を水平に引っ張り、その最大摩擦抵抗をバネ秤の読みから測定した。測定は $5\,\mathrm{em}$  回行い、その平均値を最大摩擦抵抗(g)とした。なお、測定は $20\,\mathrm{cm} - 40\,\mathrm{sm}$  R H の雰囲気下で行った。この最大摩擦抵抗が小さいほど、ガラス板と中間膜との滑り性が優

れ、合わせガラス加工時のガラス板と中間膜との位置合わせ等が容易となり、取扱い作業性に優れることになる。

# (3) 耐ブロッキング性

15cm×15cmに裁断した中間膜を2枚重ね合わせ、その上に13Kgの重りを載せ、室温で24時間放置した後、引張り試験機を用いて、500mm/分の引張り速度で180度角剥離試験を行い、剥離力を測定した。測定は5回行い、その平均値を剥離力(g)とした。この剥離力が小さいほど、中間膜同士が密着し難く、耐ブロッキング性に優れ、保管中やガラス板の間に中間膜を挟む際の取扱い作業性に優れることになる。

### 10 (4) ベークテスト

実施例21と同様にして、(a)扱き脱気法及び(b)減圧脱気法の2つの方法で予備圧着を行った後、本圧着を行って、合わせガラスを作製し、得られた合わせガラスにベークテストを施した。

表 7

5

10

15

20

					#K	実施例 24	34	HK H	実施例25	ř.	##	東施例 26	9	=======================================	比較例7	
整			表 大		操	溝格子状	مه	矮	清格子状	ىد	壳	溝格子状	112	是	溝刻線状	
3 H :	٠ ۲	トンドく可能			#R	規則的		#\$	規則的		***	規則的		##	規則的	
ノボィ	Ŷ	10 TL 6 31 +	分断部	分断部の有無	144	有り		極	9	ı	車	( I		兼	رد ا	
<	` 		分断角	分断部の溝の深さ	:20	第 3		*	やや深い	_	践	<u>ئ</u> س			-	
{	拉	平均表面粗さ(R	R 2 : 4	: #m)	.,,	38. 2	<u>.</u>	4	2. 2		4	6. 1		5	8. 5	
	凝光	膜滑り性(最大摩	摩擦抵抗:8	t:8)		265		2	5 5		2	2 2 5		n	302	
<u> </u>	耐了	耐ブロッキング性	t (學)開	性(剝離力:8)	4	420		4	4 1 5			380		4	440	
<u> </u>		世界移迁雙附	ر <u>ا</u>	极き脱気法	8 0	0 2	8 0	0 9	7 0	0 8	0 9	0 2	0 8	0 9	0 2	8 0
\$ \$			) •	域圧脱気法	0 9	0 8	001	09	0 8	100	0 9	8 0	001	0 9	8 0	102
# #	· Κ 4	强治答案 / 7.	- A	扱き脱気法	2	1	0	4	1	0	9	2	0	2 0	0 1	0
			<u>۲</u>	越压脱気法	1	0	0	2	1	0	4	က	0	2 5	1.5	0

表7から明らかなように、本発明による実施例24~26の合わせガラス用中間膜は、いずれも膜滑り性及び耐ブロッキング性に優れていた。これは保管時や合わせガラス加工時の取扱い作業性が優れていることを示している。

また、本発明による実施例24~26の合わせガラス用中間膜を用いて作製した実施例24~26の合わせガラスは、扱き脱気法における各予備圧着温度及び減圧脱気法における各予備圧着温度のいずれの場合についても、ベークテスト時の気泡による発泡枚数(不良枚数)が少なかった。これは、予備圧着工程における脱気性及びシール性が優れていたことを示している。

これに対し、エンボス凸部に分断部を付与しなかった比較例7の合わせガラス 10 用中間膜を用いて作製した比較例7の合わせガラスは、扱き脱気法及び減圧脱気 法において予備圧着温度が低い場合、ベークテスト時の気泡による発泡枚数(不 良枚数)が多かった。これは、予備圧着工程におけるシール性に問題があり、従 って脱気が不充分であったことを示している。また、予備圧着工程における製造 条件に制約があることも示している。

#### 15 (実施例27)

20

図20は本発明の中間膜の一例を示し、(a)はその平面図、(b)は側面図である。

図20に示したように、本発明の中間膜1は、押出成形によって成形された熱可塑性樹脂シートの両面に、図示しない、微細な凹凸からなる多数のエンボス3が形成され、片面に凹溝2が形成され、凹溝2と熱可塑性樹脂シートの押出方向 Xとが略平行に設けられている。

#### 〔中間膜の製造〕

可塑化ポリビニルブチラール樹脂をシート状に押出成形して得られた熱可塑性樹脂シート(積水化学工業社製、商品名「エスレックフィルムDXN膜」、厚み760 $\mu$ m)を、図20に示した凹溝2の形状に対応する三角柱の突起(高さ120 $\mu$ m、底辺150 $\mu$ m、間隔300 $\mu$ m)が連続して軸方向に形成され、突起以外の表面に、ランダムに凹凸模様が形成された金属ロールと、表面にランダムに凹凸模様が形成された45~75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、上記熱可塑性樹脂シートをこの

凹凸形状転写装置に通し、シートの一方の面に凹溝2が押出方向に平行に連続して形成され、両面にエンボス凹凸部が形成された中間膜を得た。このときの転写条件は下記のとおりであった。

DX膜の温度:常温

5 ロール温度:120℃

線速:10m/分、

プレス線圧:500kPa

(比較例8)

金属ロールの三角柱の突起を、軸方向と45°の角度をなすように設けたこと 10 以外は、実施例27と同様にして中間膜を得た。

(比較例9)

金属ロールの三角柱の突起を、円周方向に設けたこと以外は、実施例27と同様にして中間膜を得た。

(比較例10)

15 金属ロールの三角柱の突起に替えて、V字型の凹溝を円周方向に設けたこと以外は、実施例27と同様にして中間膜を得た。

実施例27、比較例8~10で得られた中間膜を、以下の評価に供した。

[10点平均表面粗さ {Rz(μm)}]

実施例1と同様にして測定した。

20 〔ベークテスト〕

まず、次の2つの方法 { (a) 扱き脱気法、(b) 減圧脱気法} で予備圧着を行った後、本圧着を行って、合わせガラスを作製した。

#### (a)扱き脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2mmで中央部に対し周辺部が1mm湾曲しているガラス)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体を加熱オーブン中で、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ70  $\mathbb C$ 、80  $\mathbb C$   $\mathbb D$   $\mathbb C$   $\mathbb D$   $\mathbb C$   $\mathbb C$ 

### (b) 減圧脱気法

中間膜を二枚の透明なフロートガラス板(縦  $30 \text{ cm} \times$ 横  $30 \text{ cm} \times$ 厚さ 2 m mで中央部に対し周辺部が 1 mm 湾曲しているガラス)の間に挟み、はみ出た部分を切り取り、こうして得られた積層体をゴムバック内に移し、ゴムバックを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-60 k Pa (絶対圧力 16 k Pa) の減圧下で  $10 \text{ 分間保持し、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ <math>70 \text{ C}$ 、80 C

上記(a)及び(b)の方法で予備圧着された積層体を、それぞれオートクレープ中で、温度140℃、圧力1.3MPaの条件下に10分間保持した後、500℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを作製した。

上記で得られた合わせガラスに対して、実施例1と同様にしてベークテストを 行った。

15

表8

ŋ	Λ
L	υ

				実施例	ŀ	比較(	<b>9</b> ]
				27	8	9	10
十点平均是	大面对	性さ	(μm)	35.5	37.8	40.2	64.2
ベーク テスト	扱	;z=	7 0.℃	1	4	3	1 4
	扱き脱気法	温	80℃	1	2	4	8
発泡した	<b>双</b> 法	度	90℃	0	1	2	11
(校 / 100枚)	凝	<b>3</b> ≡	70℃	0	0	1	1
	減圧脱気法	温	80℃	0	1	0	2
	法法	度	90℃	1	0	1	0

### (実施例28)

#36アルミナを吹き付けて表面粗さ約60 $\mu$ mをもつ金属ロールの表面に、 離型剤処理を行った後、100℃で中間膜表面へ形状転写を行い、表面粗さ30  $\mu$ mのランダム形状のエンポスを有する中間膜を得た。別の金属ロール表面に、 三角ミルを押しつけることで、金属ロール表面に深さ200 $\mu$ mの溝をつけ、更 に直交する三角ミルを押しつけることにより、溝の深さ(中間膜では底面)を1 5 $\mu$ m減らしたロール表面を作製した。次に、このロール表面を、上記のランダ ム形状のエンボスを有する中間膜表面へ形状転写を行い、深さ55 $\mu$ m、幅60  $\mu$ mの溝に、深さ40 $\mu$ m、幅80 $\mu$ mの溝部分が500 $\mu$ mのピッチで存在し、 満間隔が300 $\mu$ mである中間膜を得た。

#### (実施例29)

金属ロールの表面を中間膜表面へ形状転写する圧力条件を変更したこと以外は、 実施例 28 と同様にして、ランダム形状のエンボス粗さ 30  $\mu$ mミクロンを有し、 深さ 55  $\mu$ m、幅 60  $\mu$ mの溝に、深さ 50  $\mu$ m、幅 70  $\mu$ mの溝部分が 500  $\mu$ mのピッチで存在する中間膜を得た。

# (比較例11)

15

金属ロールの表面を中間膜表面へ形状転写する圧力条件を変更し、また、凹形状の溝を付与しないこと以外は、実施例28と同様にして、表面粗さ55μmのランダム形状のエンボスを有する中間膜を得た。

#### 20 (比較例12)

凹形状の溝を付与しないこと以外は、実施例28と同様にして、表面粗さ30 μmのランダム形状のエンボスを有する中間膜を得た。

#### (比較例13)

四角錐が均一に並んだエンボス形状を金属ロールに加工し、この金属ロールの 25 表面を中間膜表面へ形状転写させることにより、表面粗さ70μmの中間膜を得た。

#### (比較例14)

金属ロールの表面を中間膜表面へ形状転写する圧力条件を変更したこと以外は、 比較例13と同様にして、表面粗さ35 μmの中間膜を得た。

### (比較例15)

実施例 28 と同様にして、表面粗さ 30  $\mu$  mのランダム形状のエンポスを有する中間膜を得た。次に、山状の溝を入れた鉄ロール表面を作製し、このロール表面を、上記のランダム形状のエンポスを有する中間膜表面へ形状転写を行い、深さ 55  $\mu$  m、幅 60  $\mu$  mの三角波状の溝で、溝間隔が 300  $\mu$  mの中間膜を得た。実施例及び比較例で得られた中間膜の性能(脱気性)を下記の方法で評価した。結果を表 9 に示した。

### [脱気性の評価]

中間膜の両側から透明な2mm厚みのガラス板で挟み、得られた合わせガラス 10 を、表9に示した初期温度のゴムバック内に入れ、ゴムバックを吸引減圧系に接 続し、減圧を開始する。減圧を10分間程保持した後、表9に示した到達温度ま で加熱して、その後冷却して合わせガラスを取り出し、その発泡状態を観察した。 なお、発泡なしを〇、発泡ありを×として評価した。

15

20

表 9

	- 1										
5				9 2	0	0	0	0	0	0	×
		:	(C)	0 6	0	×	0	0	0	0	×
			到達溫度(	8 5	×	× .	×	0	0	0	×
10			画	8 0	×	×	×	0	×	0	×
		<u> </u>		7.5	×	×	×	0	×	×	×
		脱気性 (発泡状態)		0 2	×	×	×	×	×	×	×
15		3気性(		5 0	×	×	×	×	×	×	×
		ace;		4.5	0	0	×	×	×	×	0
	·		(2)	4 0	0	0	×	×	×	×	0
20			期温度(	3 5	0	0	0	×	×	×	0
			机机	3.0	0	0	0	×	0	×	0
				2 5	0	0	0	×	0	0	0
25				2.0	0	0	0	0	0	0	0
					82	53	=	12	13	14	15
		1			寒	福官		,	开数	<u>\$</u>	

〇:発泡なし、×:発泡あり

表9から明らかなように、本発明による実施例の中間膜は、減圧初期温度を高くし、到達温度を低くすることができて、予備圧着工程での脱気性に優れている。

# 産業上の利用可能性

10

15

20

25

5 本発明は、上述の構成よりなるので、エンボスの配置や間隔が規則的な場合で もモアレ現象の出現がないので、裁断時や合わせ加工時の作業性が良好であり、 また、予備圧着工程での脱気性に優れる合わせガラス用中間膜を提供することが できる。

本発明は、また、上記構成よりなるので、予備圧着工程において脱気開始温度 を厳密に制御する必要がないにもかかわらず、周縁部シール先行現象を発生する ことがなく、優れた脱気性を発揮する合わせガラス用中間膜を提供することができる。更に、膜の自着力を抑えることができるので、膜取扱い性に優れている。

本発明は、更に、上述の構成よりなるので、保管中のブロッキング性や合わせ加工の際の取扱い作業性がよいことはもとより、予備圧着工程での脱気性及びシール性に優れる合わせガラス用中間膜を提供することができる。従って、特に面積が広い合わせガラスや曲率が大きい合わせガラスを製造する場合や合わせガラスの生産性を上げる場合であっても、脱気、及び、ガラス板と中間膜とのシールのいずれも充分に行われ、オートクレーブ内で加熱加圧して本圧着する際に、シール不良部から加圧空気が侵入して、ガラス板と中間膜との間に気泡が発生するような品質不良が改善され、特に透明性が優れた合わせガラスを得ることができる。

また、本発明の合わせガラス用中間膜によれば、予備圧着工程において広い温度範囲で良好な脱気及びシールが可能となり、予備圧着温度の管理が容易となり合わせ加工の作業性が著しく向上するという利点がある。多様なユーザーの多様な加工条件にも簡便かつ効率的に対応することができる。

従って、本発明の合わせガラス用中間膜によれば、合わせガラス作製時の作業 性に優れると共に、過酷な条件下においても気泡の発生による品質不良を殆ど生 じない高品質の合わせガラスを得ることができる。

本発明の合わせガラス用中間膜を用いて作製された合わせガラスは、過酷な条

件下においても気泡の発生による品質不良を殆ど生じない高品質のものであり、 自動車、車輌、航空機、建築物等の窓ガラスとして好適に用いられる。 57

### 請求の範囲

- 1. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって
- 5 一方の面のエンボスの配置間隔と他方の面のエンボスの配置間隔とが異なるよう に形成されていることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
  - 2. 少なくとも片面の凹部が連続するように形成されていることを特徴とする請求の範囲第1項記載の合わせガラス用中間膜。

- 3. 少なくとも片面の凹部の底辺が連続するように形成されていることを特徴とする請求の範囲第1又は2項記載の合わせガラス用中間膜。
- 4. 一方の面のエンボスの配置間隔(L1)と、他方の面のエンボスの配置間隔 15 (L2)とは、(L1) < (L2)の関係にあり、
  - 一方の面の凸部の配置位置の前後(L1×0.25)の範囲内に、他方の面の凸部が存在する割合は、一方の面の凸部の数の50%以下である
  - ことを特徴とする請求の範囲第1、2又は3項記載の合わせガラス用中間膜。
- 20 5. 少なくとも片面の凹部は、刻線状の模様を形成していることを特徴とする請求の範囲第1、2、3又は4項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 6. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって、
- 25 少なくとも片面の前記凹部は、底辺が連続した溝形状を有しており、かつ、同一面の前記凸部は、頭頂が平面形状を有している ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。
  - 7. 更に、凸部の頭頂の平面形状の上に微細な凹部及び凸部が形成されているこ

とを特徴とする請求の範囲第6項記載の合わせガラス用中間膜。

8. 頭頂の表面の粗さ R a が 2.  $5 \mu$  m以上であることを特徴とする請求の範囲 第7項記載の合わせガラス用中間膜。

- 9. 頭頂の表面の粗さRaが3. 0μm以上であることを特徴とする請求の範囲 第7又は8項記載の合わせガラス用中間膜。
- 10. 平面形状は、幅が凸部の配置間隔の20%以上であることを特徴とする請10 求の範囲第6、7、8又は9項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 11. 平面形状は、幅が一定であることを特徴とする請求の範囲第6、7、8、9又は10項記載の合わせガラス用中間膜。
- 15 12. 平面形状は、幅がランダムであることを特徴とする請求の範囲第6、7、8、9、10又は11項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 13. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって、
- 20 少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、 前記溝形状の内に分断壁が形成されていることを特徴とする合わせガラス用中間 膜。
- 14.分断壁は、高さが溝の深さより小さいことを特徴とする請求の範囲第13 項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 15. 分断壁は、等間隔で配置されていることを特徴とする請求の範囲第12又は14項記載の合わせガラス用中間膜。

16. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、同一水準になく、

少なくとも片面は、表面粗さ(Rz)と陰原型の表面粗さ(Rzv)との比がR

5 z v / R z ≥ 0. 25である

ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

17. 溝形状は、線状に形成されていることを特徴とする請求の範囲第16項記載の合わせガラス用中間膜。

10

- 18. 溝形状は、格子状に形成されていることを特徴とする請求の範囲第16項記載の合わせガラス用中間膜。
- 19. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された 15 合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面の前記凹部は、連続した溝形状を有しており、

同一面の前記凸部は、溝形状の分断部を有しており、かつ、

前記分断部は、溝形状の底辺が前記凹部の連続した溝形状の底辺と同一水準にないことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

- 20. 凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とが格子状を形成していることを特徴とする請求の範囲第19項記載の合わせガラス用中間膜。
- 21. 凹部の溝形状と前記凸部の分断部の溝形状とがランダムな形状を形成して 25 いることを特徴とする請求の範囲第19項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 22. 凸部の分断部の溝形状の深さが一定であることを特徴とする請求の範囲第
  - 19、20又は21項記載の合わせガラス用中間膜。

- 23. 凸部の分断部の溝形状の深さがランダムであることを特徴とする請求の範囲第19、20又は21項記載の合わせガラス用中間膜。
- 24. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された6 合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面に凹溝が形成されており、

前記凹溝と前記熱可塑性樹脂シートの押出方向との角度が25°未満であることを特徴とするガラス用中間膜。

10 25. 熱可塑性樹脂シートの両面に凹部と凸部とからなるエンボスが形成された合わせガラス用中間膜であって、

少なくとも片面の前記凹部は、溝形状を有しており、

前記溝形状は、断面積が一定であり、かつ、最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝が形成された深さ分布を有することを特徴とする合わせガラス用中間膜。

- 26. 最大溝深さに対し5%以上の深さをもつ溝は、10mm以下の配置間隔で 形成されていることを特徴とする請求の範囲第25項記載の合わせガラス用中間 膜。
- 20 27. 溝形状は、合わせガラス用中間膜の流れ方向に平行に形成されていることを特徴とする請求の範囲第25又は26項記載の合わせガラス用中間膜。
- 28. 熱可塑性樹脂シートは、可塑化ポリビニルアセタール樹脂シートからなることを特徴とする請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、1 1、12、13、14、15、16、17、18、19、20、21、22、2 3、25、26又は27項記載の合わせガラス用中間膜。
  - 29. 少なくとも一対のガラス間に、請求の範囲第1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、18、19、20、

21、22、23、25、26、27又は28項記載の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

WO 01/02316

図 1

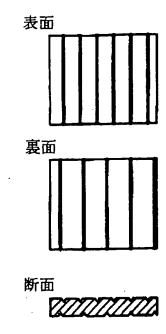
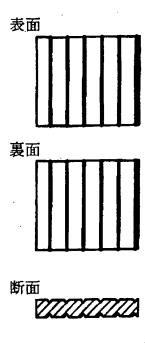


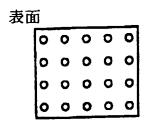
図 2

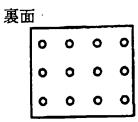


WO 01/02316

2 / 10

図 3





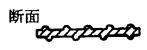


図 4

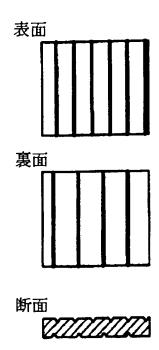


図 5

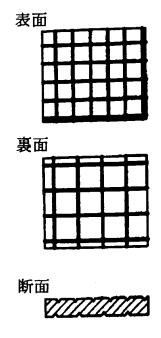


図 6

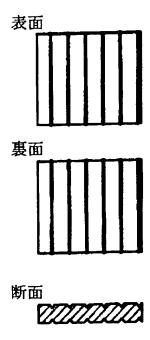


図 7

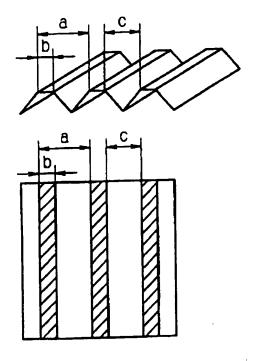


図 8

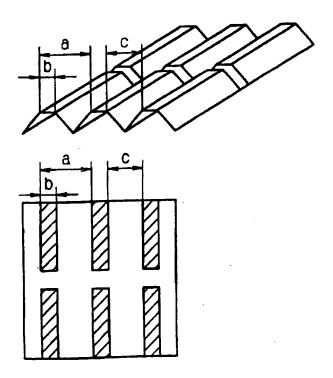
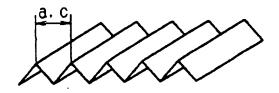


図 9



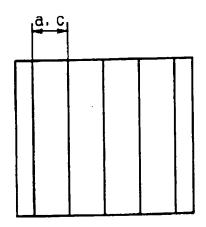
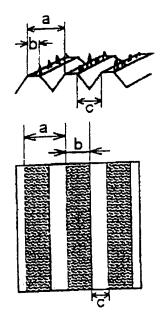


図 10



WO 01/02316

図 11

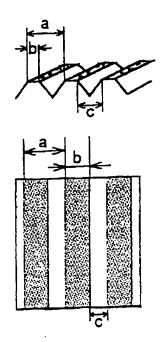


図 12

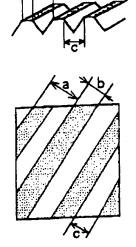


図 13

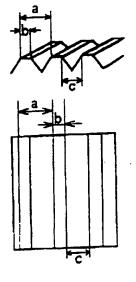


図 14



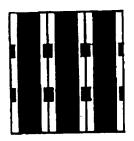


図 15

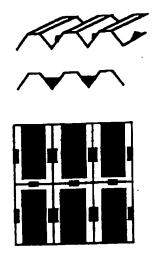


図 16





図 17

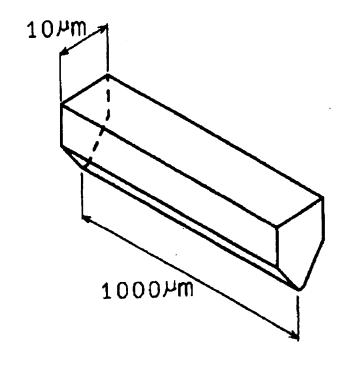
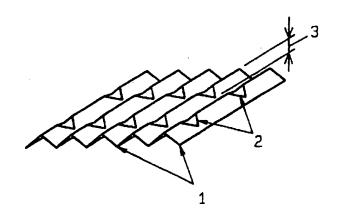


図 18



1 0 / 10

図 19

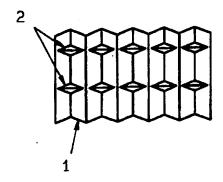
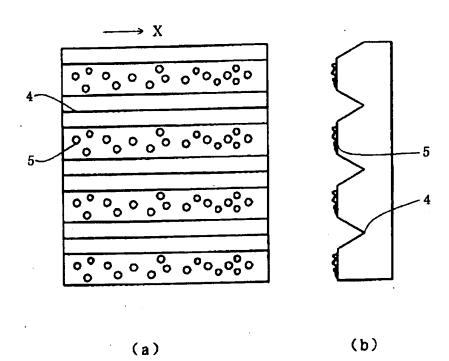


図 20



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04383

		FC1/0F00/04383
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> C03C 27/12		
According to International Patent Classification (IPC) or to both na	tional classification and IPC	S
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed Int.Cl <sup>7</sup> C03C 27/12		
Documentation searched other than minimum documentation to the Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000	Toroku Jitsuyo Jitsuyo Shinan	Shinan Koho 1994-2000 Toroku Koho 1996-2000
Electronic data base consulted during the international search (name	e of data base and, where pi	racticable, search terms used)
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	•	
Category* Citation of document, with indication, where ap		
A JP, 59-39748, A (Asahi Glass Co 05 March, 1984 (05.03.84), Claims (Family: none)	o., Ltd.),	1-29
A JP, 6-198809, A (Sekisui Chemic 19 July, 1994 (19.07.94), Claims; Par. Nos. [0011] to (Family: none)		1-5,12-29 6-12 Fig. 1
X JP, 11-147735, A (Sekisui Chemi Y 02 June, 1999 (02.06.99), Claims; Par. Nos. [0017] to [00		16-18 1-15,19-29
X JP, 9-295839, A (Sekisui Chemic Y 18 November, 1997 (18.11.97), Claims; Par. No. [0017]; Fig. 1		19-23 1-18,24-29
Y WO, 95/19885, A1 (MONSANTO COMP 27 July, 1995 (27.07.95), Claims & EP, 741640, A1 & US, 5455103, A & JP, 9-50		1-29
Further documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family an	nnex.
Special categories of cited documents:  A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filing date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	priority date and not in understand the princip document of particular considered novel or castep when the document of particular considered to involve combined with one or combination being obv	ned after the international filing date or a conflict with the application but cited to the or theory underlying the invention relevance; the claimed invention cannot be unnot be considered to involve an inventive at its taken alone relevance; the claimed invention cannot be an inventive step when the document is more other such documents, such vious to a person skilled in the art the same patent family
Date of the actual completion of the international search 17 October, 2000 (17.10.00)	Date of mailing of the into 07 November	ernational search report , 2000 (07.11.00)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer	
Facsimile No.	Telephone No.	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP00/04383

ategory*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
	Claims	
Y A	JP, 6-127983, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 May, 1994 (10.05.94), Claims (Family: none)	18-20 1-17,21-29
PY A	<pre>JP, 2000-7390, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 11 January, 2000 (11.01.00), Claims (Family: none)</pre>	6-12 1-5,13-29
A	JP, 2000-256043, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 19 September, 2000 (19.09.00), Claims (Family: none)	1-29
A	JP, 2000-256044, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 19 September, 2000 (19.09.00), Claims (Family: none)	1-29

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

#### 発明の風する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C03C 27/12 調査を行った分野 調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC)) Int. Cl' C03C 27/12 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996年 1971-2000年 日本国公開実新案公報 日本国登録実用新案公報 1994-2000年 日本国実用新案登録公報 1996-2000年 国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語) 関連すると認められる文献 引用文献の 関連する 請求の範囲の番号 カテゴリー\* 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 JP, 59-39748, A (旭硝子株式会社) 5. 3月. 198 1 - 29А٠ 4 (05.03.84) 特許請求の範囲, (ファミリーなし) JP. 6-198809. A (積水化学工業株式会社) 19. 7 1-5, 12-29 Α 月. 1994 (19.07.94) 特許請求の範囲, 【0011】 6 - 12Y - 【0022】、【0025】図1 (ファミリーなし) JP, 11-147735, A (積水化学工業株式会社) 2.6 16 - 18X Y 月. 1999 (02. 06. 99) 特許請求の範囲, 【0017】 1-15, 19-29 【0018】 (ファミリーなし) |X|| C欄の続きにも文献が列挙されている。 ┃ ┃ パテントファミリーに関する別紙を参照。 \* 引用文献のカテゴリー の日の後に公表された文献 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 もの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す) 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 よって進歩性がないと考えられるもの 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献 07.11.00 国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 17. 10. 00 特許庁審査官(権限のある職員) 4T | 9157 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 前田仁志 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3465

様式PCT/ISA/210 (第2ページ) (1998年7月)

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 9-295839, A (積水化学工業株式会社) 18. 11 月. 1997 (18. 11. 97) 特許請求の範囲, 【001 7】, 図1 (ファミリーなし)	1 9 - 2 3 1-18, 24-29
Y	WO, 95/19885, A1 (MONSANTO COMPANY) 27. July. 1995 (27. 07. 95) 特許請求の範囲 &EP, 7416 40, A1&US. 5455103, A&JP, 9-50807 8, A, 特許請求の範囲	1-29
Y A	JP, 6-127983, A (積水化学工業株式会社) 10.5月.1994 (10.05.94) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 8 - 2 0 1-17, 21-29
P Y A	JP, 2000-7390, A (積水化学工業株式会社) 11. 1月. 2000 (11. 01. 00) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	6 - 1 2 1-5, 13-29
A	JP, 2000-256043, A (積水化学工業株式会社) 1 9.9月.2000 (19.09.00) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-29
A	JP, 2000-256044, A (積水化学工業株式会社) 1 9.9月.2000 (19.09.00) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-29

様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (1998年7月) .